



Contribution à la modélisation des spectres de neutrons prompts de fission .Propagation d'incertitudes sur un calcul de fluence cuve

Léonie Berge

► To cite this version:

Léonie Berge. Contribution à la modélisation des spectres de neutrons prompts de fission .Propagation d'incertitudes sur un calcul de fluence cuve. Autre. Université Grenoble Alpes, 2015. Français. NNT : 2015GREAI039 . tel-01224477

HAL Id: tel-01224477

<https://theses.hal.science/tel-01224477>

Submitted on 4 Nov 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : **Mécanique des fluides, Procédés, Energétique**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Léonie BERGE

Thèse dirigée par **Olivier SEROT** et
codirigée par **Olivier LITAIZE**

préparée au sein du **Laboratoire d'Etudes de Physique**
dans l'**École Doctorale I-MEP2 : Ingénierie – Matériaux,**
Mécanique, Environnement, Energétique, Procédés,
Production

Contribution à la modélisation des spectres de neutrons prompts de fission. Propagation d'incertitudes à un calcul de fluence cuve.

Thèse soutenue publiquement le **7 juillet 2015**,
devant le jury composé de :

Madame Elsa MERLE-LUCOTTE

Professeure à Grenoble INP, Présidente

Monsieur Cheikh DIOP

Professeur à l'INSTN Saclay, Rapporteur

Monsieur Jan WAGEMANS

Chercheur au SCK-CEN, Rapporteur

Monsieur Olivier SEROT

Chercheur au CEA Cadarache, Directeur de thèse

Monsieur Olivier LITAIZE

Chercheur au CEA Cadarache, Encadrant

Monsieur Jose BUSTO

Professeur à l'Université d'Aix-Marseille, Membre

Monsieur David LECARPENTIER

Ingénieur-chercheur chez EDF Clamart, Membre Invité



Remerciements

Je tiens d’abord à remercier chaleureusement Olivier Litaize, qui a suivi et encadré mes travaux pendant trois ans, pour ses conseils, son ouverture d’esprit, et sa disponibilité. Je remercie également Olivier Serot, mon directeur de thèse et grand expert de la fission. Merci pour toutes ces discussions et digressions sur la fission et tout ce qu’elle implique.

Un grand merci à Cyrille De Saint Jean pour ses conseils et les nombreuses discussions que nous avons eues, ainsi que pour avoir donné l’occasion à une non-neutronicienne d’intégrer son laboratoire. Un immense merci à Pascal Archier pour son aide précieuse, notamment sur la partie développements dans CONRAD, et pour sa bonne humeur à l’épreuve de tous les bugs. Merci aussi à Yannick Pénéliou, pour son expertise en matière de TRIPOLI.

D’une façon générale je remercie toute l’équipe « Données Nucléaires » et tous les membres du laboratoire, pour avoir contribué de près ou de loin à la réussite de ce travail. Merci aussi pour votre aide dans ma recherche d’emploi.

Je remercie également Christophe Destouches et Nicolas Thiollay du CEA/SPEX, pour les échanges sur la fluence cuve, et pour leurs encouragements. Merci aussi à Stéphane Bourganet pour les discussions fructueuses sur les bandes de Green de TRIPOLI. Merci aux membres de mon jury de thèse, pour l’intérêt qu’ils ont porté à ce travail.

Un grand merci également au « LEPH Jeune Génération », aux nombreux doctorants passés et présents, pour les échanges de point-de-vue et de commandes LaTeX, pour les pauses café, et surtout, pour leur amitié. Merci à mon mentor Li Cai, pour ses conseils zen et son enthousiasme.

Enfin, merci à Pierre Tamagno, pour sa relecture attentive de cette thèse, et pour sa présence et son soutien indéfectible.

Plan de la thèse

Introduction	7
L'évaluation des données nucléaires de base	7
Le processus et les observables de fission	8
Principe et enjeux de l'évaluation des spectres de neutrons prompts de fission . . .	13
1 Revue des mesures de spectre	15
1.1 Détection des neutrons et mesure de leur énergie	15
1.1.1 Le détecteur de proton de recul	19
1.1.2 La chambre à fission	20
1.1.3 Mesure de l'énergie par temps de vol	21
1.2 Dispositif général des expériences de mesure de spectre	21
1.3 Analyse des données	23
1.4 Revue des expériences disponibles	26
2 La modélisation du spectre	37
2.1 Etat de l'art sur les modèles analytiques	39
2.1.1 Les modèles historiques : maxwellienne et modèle de Watt	39
2.1.2 Modèle de Madland-Nix ou de Los Alamos	42
2.2 Modélisation du spectre via le code FIFRELIN	47
2.2.1 Echantillonnage des fragments de fission	47
2.2.2 La cascade de désexcitation des fragments	49
2.2.3 Accès aux autres observables de fission et corrélation entre ces observables	51
2.3 Influence des paramètres de modèle sur le spectre	54
2.3.1 Rappels sur la théorie de Weisskopf	54
2.3.2 Calcul de la section efficace inverse	56
2.3.3 Influence de la section efficace inverse sur le spectre FIFRELIN et re-	
cherche de paramètres optimaux	62
3 Calcul du spectre et de sa matrice de covariance	71
3.1 Effet de la contrainte de normalisation sur la matrice de corrélation d'un spectre	72
3.2 Ajustement bayésien des paramètres de modèle	74
3.2.1 Algorithme d'ajustement et modèle expérimental	75
3.2.2 Modèles et choix des paramètres <i>a priori</i>	76
3.3 Traitement des différentes sources d'incertitude expérimentale	78
3.3.1 Insuffisances de la propagation simultanée des incertitudes statistiques	
et systématiques	80
3.3.2 Une solution appropriée : la marginalisation	82

3.4	Effets comparés des incertitudes dues à la normalisation et à l'efficacité de détection dépendante de l'énergie	86
3.5	Effet de l'ajout de données mesurées	92
3.6	Résultat pour $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ et $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ et comparaison avec les évaluations internationales	95
4	Sensibilité du flux neutronique sur la cuve d'un réacteur au spectre	105
4.1	Calcul du flux cuve par la simulation Monte-Carlo	107
4.2	Fonction importance des neutrons sur le flux à la cuve	110
4.3	Comparaison du flux sur la cuve provenant de différents spectres	113
4.4	Propagation des covariances du spectre source au flux sur la cuve	117
	Conclusion et perspectives	125
	Annexe A Rappels de probabilités et statistiques	127
A.1	Notions de covariance, de corrélation et de variance sous forme matricielle . .	127
A.2	Propagation des covariances	130
	Annexe B Le PFNS dans les évaluations internationales : les contraintes du format ENDF	133
B.1	Structure de la librairie évaluée	134
B.2	Structure de la <i>file</i> 5 18	134
B.3	Structure de la <i>file</i> 35 18	135
B.4	Correspondance entre le PFNS et ses covariances dans l'évaluation	136
B.4.1	Du point de vue de l'utilisateur	136
B.4.2	Du point de vue de l'évaluateur	137
	Annexe C Résultats additionnels	139
C.1	Spectre et matrice de covariance associée pour les modèles maxwellien et de Watt	139
C.2	Propagation des spectres maxwellien et de Watt et de leurs covariances . . .	144
	Annexe D Publications	147
	Bibliographie	163

Introduction

Ce travail de thèse concerne l'évaluation des spectres de neutrons prompts de fission, ou PFNS pour *Prompt Fission Neutron Spectra*. Le spectre énergétique des neutrons prompts est une donnée importante pour de nombreuses applications de l'énergie nucléaire. Cependant, si le spectre de la fission spontanée du ^{252}Cf a été mesuré de nombreuses fois et est un standard international, il reste mal connu pour d'autres isotopes. Les différentes mesures souffrent d'incertitudes élevées notamment dans les ailes du spectre, et présentent des contradictions. L'Agence Internationale pour l'Energie Atomique (AIEA) a consacré de 2010 à 2014 un *Coordinated Research Project* (CRP) sur l'évaluation des PFNS pour les actinides, coordonné par R. Capote [31]. Les conclusions de ce CRP seront publiées courant 2016. Au cours de cette thèse ont été abordés plusieurs aspects du problème des spectres de neutrons prompts de fission, comme la modélisation des spectres, l'évaluation des spectres et de leurs covariances à travers des modèles connus, et l'étude de l'impact sur un calcul neutronique. Avant de détailler les travaux de thèse, on se propose de rappeler dans cette introduction ce que recouvre l'évaluation des données nucléaires de base, qui est une des activités du Laboratoire d'Etudes de Physique du CEA Cadarache. On parlera du processus de la fission et de ce que sont les neutrons prompts, puis on rappellera le principe et les enjeux de l'évaluation du PFNS.

L'évaluation des données nucléaires de base

On désigne par « données nucléaires de base », les grandeurs qui caractérisent le comportement des noyaux. Cela recouvre à la fois les propriétés intrinsèques du noyau (masse, période, voies de décroissance, etc.), et les caractéristiques des interactions nucléaires (section efficace, nature, nombre et propriétés des produits de réaction, etc.). Les données nucléaires permettent de caractériser la probabilité d'occurrence d'un événement, lié à une décroissance via son rapport de branchement, ou lié à une interaction, via sa section efficace. Elles permettent aussi de caractériser l'état final de cet événement : quelles sont les nouvelles particules en jeu (rendements), quelles sont leurs distributions en énergie et en angle, etc. Ces données sont nécessaires à beaucoup de domaines d'application : physique fondamentale, imagerie, médecine, dosimétrie, radioprotection, et bien sûr physique des réacteurs. Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre de l'évaluation des données nucléaires pour la neutronique.

La neutronique est l'étude de la population de neutrons dans le cœur d'un réacteur nucléaire. Elle permet de calculer le flux de neutrons, d'évaluer la criticité du cœur du réacteur, etc. Il existe deux familles de codes de calcul pour la neutronique : les codes déterministes, qui résolvent l'équation de Boltzmann du transport des neutrons, et les codes basés sur la méthode de Monte-Carlo. Tous ces codes ont besoin des données nucléaires comme données d'entrées. C'est la raison pour laquelle les données nucléaires évaluées sont disponibles sous

forme de bases de données internationales, appelées bibliothèques ou librairies. Le format de ces bibliothèques est standardisé, c’est le format ENDF [29]. Avec les progrès constants des algorithmes de ces codes et la réduction des biais de calcul, les données nucléaires sont devenues la principale source d’incertitude sur les calculs neutroniques. Il existe en particulier trois grandes bibliothèques internationales de données nucléaires :

- **ENDF/B-VII** [14], principalement américaine, maintenue par le Cross Section Evaluation Working Group (CSEWG) américain. La dernière version est la version ENDF/B-VII.1, publiée en 2011.
- **JEFF-3** [53], pour « Joint Evaluated Fission and Fusion File », est un projet international coordonné par la NEA, l’Agence pour l’Energie Nucléaire de l’OCDE. La dernière version, JEFF-3.2, a été publiée en mars 2014, et comporte une large contribution du CEA. C’est essentiellement dans le cadre de JEFF que se traduisent les efforts du CEA en matière d’évaluation de données nucléaires.
- **JENDL-4** [64], pour « Japanese Evaluated Nuclear Data Library », est la librairie du JAEA (Japanese Atomic Energy Agency). La dernière version, JENDL-4.0, date de 2010.

Le travail d’évaluation des données nucléaires implique de combiner la connaissance expérimentale, lorsqu’elle existe, et la connaissance théorique que l’on a des observables nucléaires. Ceci afin d’en retirer l’information la plus pertinente possible, avec des incertitudes réduites. Le processus d’évaluation passe donc souvent par un ajustement bayésien des paramètres théoriques mis en jeu. Cela nécessite des codes qui fassent communiquer les parties théoriques des modèles nucléaires, avec un moteur d’ajustement bayésien. Ces codes garantissent aussi le calcul des sensibilités afin de générer la matrice de covariance associée à chaque donnée. Les codes historiquement utilisés sont SAMMY [40] et REFIT [52]. Le CEA Cadarache s’est doté depuis quelques années d’un outil couvrant les mêmes applications, mais avec des fonctionnalités plus avancées, nommé CONRAD [2] pour « Code for Nuclear Reaction Analysis and Data Assimilation ». C’est à travers des développements dans CONRAD qu’a été effectué ce travail d’évaluation des spectres de neutrons prompts de fission et de la matrice de covariance associée, comme on le verra dans ce document.

Avant de parler du principe et des enjeux de l’évaluation des spectres de neutrons prompts de fission, on expose brièvement le phénomène de fission et les observables reliées.

Le processus et les observables de fission

Lors de la fission d’un noyau lourd (actinide), celui-ci se scinde le plus généralement en deux fragments plus légers. Ces deux fragments peuvent parfois être accompagnés d’une particule légère, on parle alors de fission ternaire ; ce phénomène reste rare (environ 0.5% des fissions). La fission donne lieu à un dégagement d’énergie de l’ordre de 200 MeV. Cette énergie se retrouve sous forme d’énergie cinétique des fragments de fission, ainsi que d’énergie cinétique des neutrons et gammas prompts émis (voir table 1). La réaction en chaîne, qui est le propre de la fission, conditionne à la fois la sûreté et l’efficacité de la production d’énergie nucléaire. Un neutron émis lors d’une fission va à son tour provoquer une fission, avec une

probabilité qui dépend de son énergie. Le spectre en énergie des neutrons de fission et leur multiplicité sont donc déterminants pour l’entretien de la réaction en chaîne, par exemple dans les réacteurs électro-nucléaires.

On s’intéressera à la fission spontanée (fission d’un isotope donné), et à la fission induite par neutron, c’est-à-dire la fission qui résulte de l’interaction d’un noyau cible avec un neutron d’énergie E_n .

Source	Energie (MeV)
Energie cinétique des fragments	169.13 ± 0.49
Energie cinétique des neutrons prompts	4.92 ± 0.07
Energie cinétique des neutrons retardés	$(7.40 \pm 1.11) \cdot 10^{-3}$
Energie dégagée par émission des gammas prompts	6.6 ± 0.5
Energie dégagée par émission des gammas retardés	6.33 ± 0.05
Energie dégagée par émission des β	6.50 ± 0.05
Energie des neutrinos	8.75 ± 0.07
Energie totale libérée par fission	202.23 ± 0.13

TABLE 1 – Répartition de l’énergie libérée par la fission dans le cas de l’ $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ (évaluation JEFF-3.2).

Les modèles de la fission induite par neutron sont basés sur l’hypothèse du noyau composé, proposée dès 1936 par N. Bohr [8], et utilisée pour les réactions de neutrons d’énergie inférieure à quelques MeV. On décrit le phénomène en deux phases distinctes :

1. Formation d’un noyau composé (A, Z) ayant une énergie d’excitation $E_A = E_n + S_n \frac{A}{A+1}$, où S_n est l’énergie de séparation du neutron du noyau A dans son état fondamental ;
2. Fission du noyau composé.

C’est l’évolution du noyau composé ou noyau fissionnant, une fois formé, qu’il est important de connaître pour décrire la fission. Les largeurs Γ des résonances dans la section efficace de fission des noyaux sont de l’ordre du meV, on en déduit le temps de vie du noyau composé, de l’ordre de $\hbar/\Gamma \sim 10^{-16}$ s. Ce temps de vie est très long comparé aux échelles de temps caractéristiques des nucléons (de l’ordre de 10^{-22} s). Un équilibre statistique a le temps de s’installer dans le noyau composé. On considère donc que la désintégration du noyau composé est indépendante de la manière dont il a été formé, en dehors des grandeurs qui doivent être conservées. Bien entendu, dans le cas de la fission spontanée, seule la deuxième phase existe. La fission commence par la déformation du noyau composé, durant laquelle apparaissent deux pôles de charge, reliés par un « col », et qui s’éloignent au fur et à mesure de l’élongation du noyau (figure 1). Lorsque les forces nucléaires attractives ne compensent plus la répulsion coulombienne des deux pôles, le col se rompt, c’est la scission. Le noyau est alors scindé en deux fragments dans un état excité, qui vont subir une phase d’accélération due à la répulsion des charges. On peut avoir également des particules additionnelles à la scission, dans le cas de la fission ternaire. On désigne par neutrons et gammas prompts de fission tous les neutrons et les gammas qui participent à l’évacuation de l’énergie d’excitation du noyau fissionnant. Les neutrons prompts sont émis jusqu’à environ 10^{-15} secondes après la scission. Une fois les fragments revenus à leur état fondamental, ils sont appelés produits de fission ; ils sont très riches en neutrons, donc généralement instables. L’émission des neutrons et gammas retardés

intervient alors, environ 10^{-6} secondes et jusqu'à plusieurs minutes après la scission, et est due à la décroissance radioactive des produits de fission, notamment par émission β^- . La cause de ce « retard » est la constante de temps caractéristique de l'interaction faible, responsable de la décroissance bêta, qui est beaucoup plus élevée que les temps caractéristiques des forces forte et électromagnétique. Les neutrons prompts peuvent avoir plusieurs origines, et des probabilités d'occurrence qui font encore débat de nos jours.

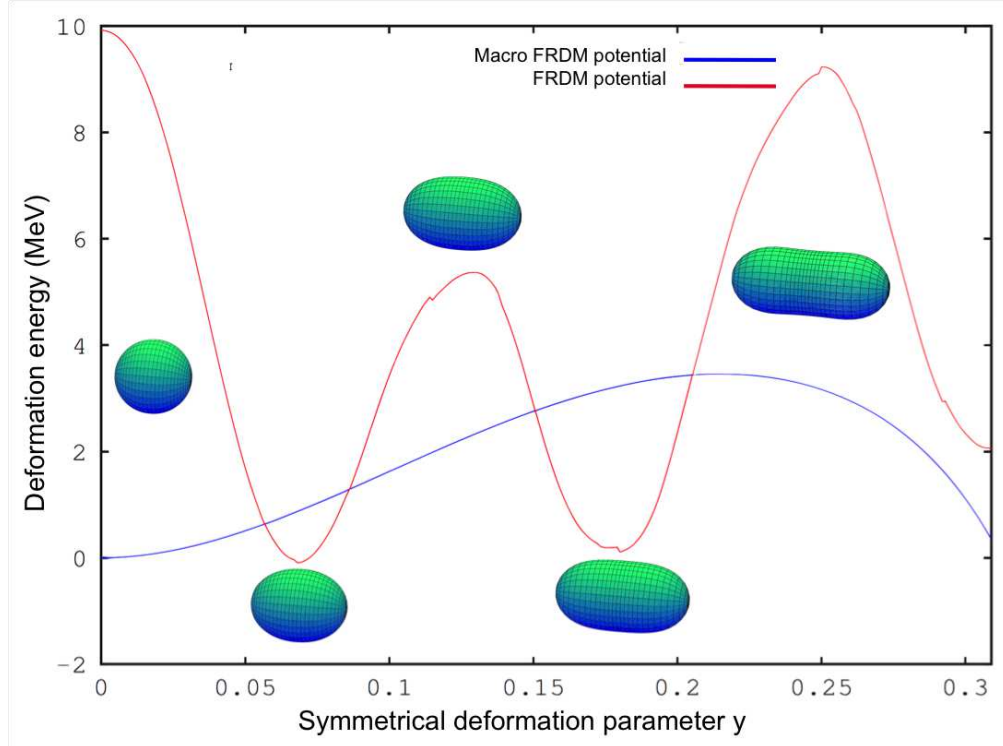


FIGURE 1 – Déformation du noyau avant la scission [71], en fonction de l'énergie de déformation et du paramètre de déformation symétrique, dans le cadre du FRDM (*Finite Range Droplet Model*).

1. **Les neutrons émis avant la fission.** Pour E_n suffisamment grand, de l'ordre de plusieurs MeV, la probabilité que le noyau composé émette un neutron avant de fissionner devient non-négligeable. C'est la fission de seconde chance. Dans ce cas le noyau fissionnant est le noyau $(A - 1, Z)$. Au fur et à mesure que E_n augmente, les fissions d'ordres supérieurs deviennent possibles (voir figure 2). La fission de première chance est notée (n,f), celle de deuxième chance est notée (n,n'f), etc. La figure 3 schématise les différentes sources de neutrons prompts. Les neutrons émis avant la fission correspondent aux neutrons notés n_1 sur la figure.

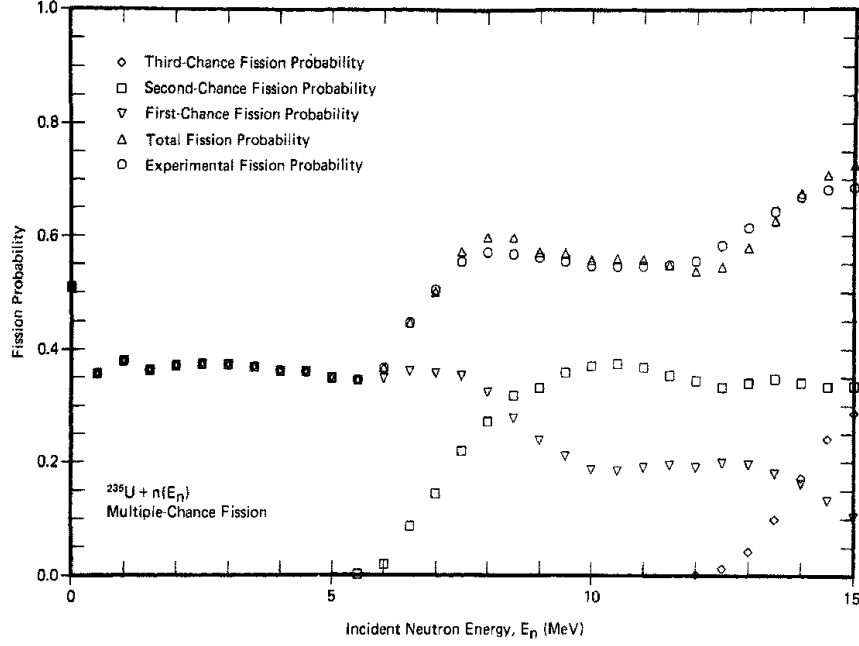


FIGURE 2 – Probabilités de fission de première chance (triangles pointe en bas), deuxième chance (carrés) et troisième chance (losanges), dans le cas de la fission du ^{235}U induite par neutron. Figure issue de la référence [47]

2. **Les neutrons de scission.** La question de l'existence de ces neutrons émis à la rupture du col, et le cas échéant, de leur spectre et multiplicité est de plus en plus présente, sur le plan à la fois expérimental [67] et théorique [13], mais reste très controversée. Si l'on peut identifier la fission de n -ième chance grâce à l'énergie du neutron émis avant la fission, il est très difficile de distinguer expérimentalement les neutrons de scission de ceux émis par les fragments, et donc de mesurer sélectivement leur spectre et leur multiplicité. La table 2 montre les rendements de neutrons de scission d'après la référence [67]. Sur la figure 3, les neutrons de scission sont notés n_2 .

Système fissionnant	Rendements de neutrons de scission
$^{252}\text{Cf}(0,f)$	$(8 \pm 3)\%$
$^{235}\text{U}(n_{\text{th}},f)$	$(7 \pm 2)\%$
$^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$	$(5 \pm 3)\%$
$^{239}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$	$(14 \pm 3)\%$

TABLE 2 – Rendements de neutrons de scission pour quatre systèmes fissionnants, en pourcentage des neutrons prompts émis, issus de la référence [67]. Ils sont estimés en sélectionnant les neutrons de scission par la mesure de leur distribution angulaire par rapport à la direction des fragments. Pour la fission spontanée du ^{252}Cf , Budtz-Jørgensen [11] avait estimé la part des neutrons de scission à moins de 1%.

3. **Les neutrons émis pendant la phase d'accélération des fragments**, appelés NEDA pour « Neutrons Emitted During Acceleration » [50, 57]. L'existence de ces

neutrons est sujette à des discussions dans la communauté scientifique. Elle semble peu probable compte tenu du temps très court de cette phase d'accélération (environ 10^{-19} s). Ces neutrons sont notés n_3 sur la figure 3.

4. **Les neutrons émis par les fragments totalement accélérés** ; avec les neutrons issus des fissions d'ordres supérieurs à zéro, il s'agit de la contribution qui est la plus souvent prise en compte dans les modèles. Ces neutrons sont notés n_4 sur la figure 3.

Ces neutrons sont appelés « neutrons d'évaporation » par l'analogie que Weisskopf fit [79] entre la désexcitation d'un noyau excité par émission de particule, et l'évaporation d'un système thermodynamique.

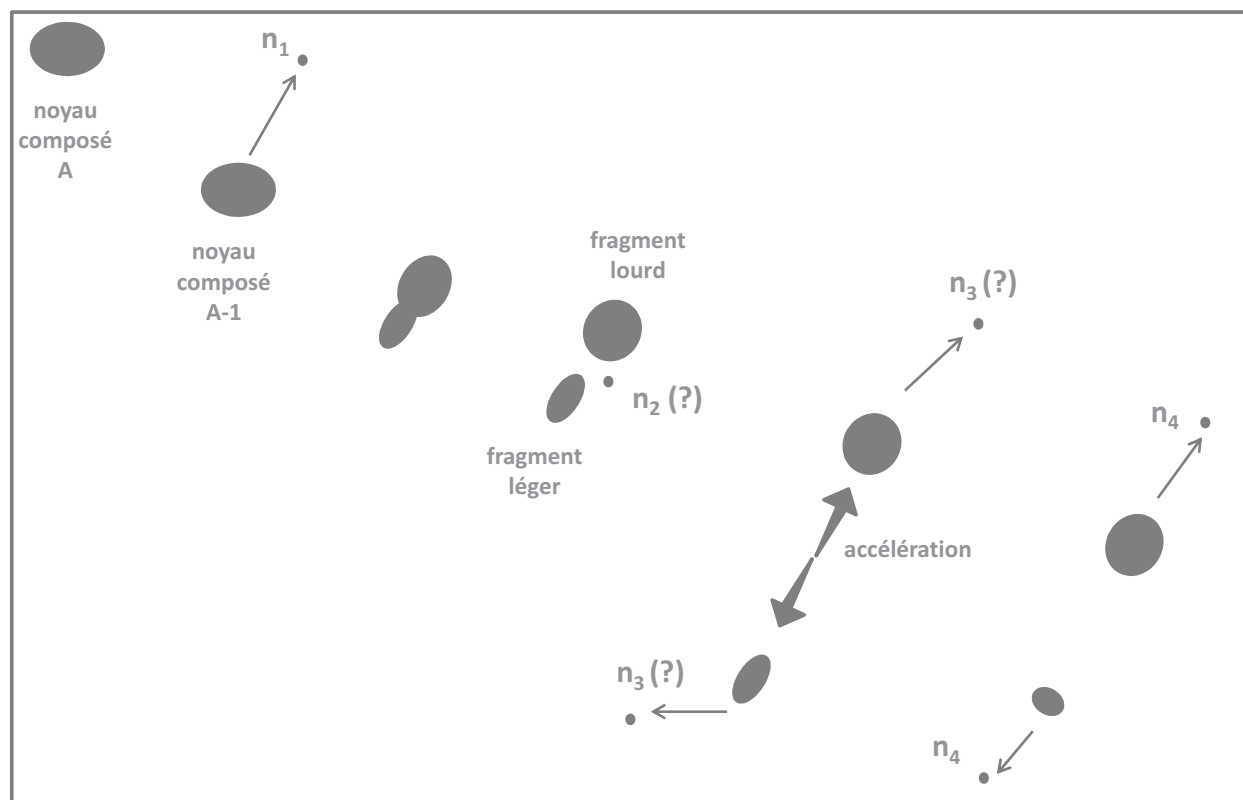


FIGURE 3 – Schéma des différentes étapes de l'émission des neutrons prompts lors d'une fission. Les neutrons notés n_1 sont les neutrons émis dans le cas d'une fission de deuxième chance ; ils sont émis avant la fission. Les neutrons notés n_2 sont les neutrons de scission, ils sont émis dès la rupture du col. Les neutrons notés n_3 sont les NEDA, émis pendant la phase d'accélération des fragments de fission. Enfin, les neutrons n_4 sont les neutrons émis par les fragments totalement accélérés. Tous ces neutrons constituent les neutrons prompts de fission et sont détectés simultanément. L'existence et les propriétés des neutrons de scission (n_2) et des NEDA (n_3) ne sont pas clairement établies.

Principe et enjeux de l'évaluation des spectres de neutrons prompts de fission

Le spectre des neutrons prompts de fission doit être évalué comme une matrice : à une énergie de neutron incident, correspond un spectre.

$$E_i \longrightarrow \chi(E_i, E)$$

L'évaluation du spectre de la fission spontanée répond à un format différent, car il s'agit d'une donnée de décroissance, et non d'une donnée relative aux interactions induites par neutron. La table 3 donne le nombre d'énergies incidentes pour lesquelles un spectre est donné dans chaque évaluation, pour trois noyaux importants pour les applications réacteurs : ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu .

	ENDF/B-VII.1	JENDL-4.0	JEFF-3.2
^{235}U	20 valeurs dans $[10^{-11}, 20]$	23 valeurs dans $[10^{-11}, 20]$	96 valeurs dans $[10^{-11}, 30]$
^{238}U	25 valeurs dans $[10^{-11}, 30]$	21 valeurs dans $[10^{-11}, 20]$	96 valeurs dans $[10^{-11}, 30]$
^{239}Pu	21 valeurs dans $[10^{-11}, 20]$	23 valeurs dans $[10^{-11}, 20]$	96 valeurs dans $[10^{-11}, 30]$

TABLE 3 – Nombre de valeurs d'énergie incidente du neutron pour décrire le spectre, dans les évaluations, et domaine couvert en énergie incidente (en MeV), dans le cas de JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 et JENDL-4.0, pour l' ^{235}U , l' ^{238}U et le ^{239}Pu .

A chaque spectre doit correspondre une matrice de covariance, qui contient les incertitudes sur chaque énergie de neutron sortant, ainsi que les corrélations du spectre à différentes énergies de neutron sortant. Cette matrice n'a rien d'intrinsèque au spectre, elle est associée à une évaluation en particulier. Elle reflète le degré de confiance que l'on peut accorder au spectre. Il n'y a donc pas de sens à utiliser un spectre d'une évaluation, avec la matrice de covariance associée à une autre évaluation. En pratique, le format ENDF, qui est le format international pour les évaluations, prévoit une matrice de covariance par groupe d'énergie incidente :

$$[E_i^1, E_i^2] \longrightarrow M_{[E_i^1, E_i^2]}$$

Cependant, il y a encore peu de données concernant les covariances du spectre dans les évaluations, comme on peut le voir dans la table 4. L'évaluation JEFF-3.2 n'en comporte pas du tout. Dans le cas d'ENDF/B-VII.1, une matrice de covariance est donnée pour le spectre entre $E_i = 10^{-11}$ MeV et $E_i = 0.5$ MeV (c'est-à-dire pour les 2 premiers spectres). Dans le cas de JENDL-4.0, on a 7 matrices de covariances, qui couvrent le même domaine en énergie incidente que le spectre lui-même.

	ENDF/B-VII.1	JENDL-4.0	JEFF-3.2
^{235}U	1 groupe $[10^{-11}, 0.5]$	7 groupes dans $[10^{-11}, 20]$	0 groupe
^{238}U	1 groupe $[10^{-11}, 0.5]$	7 groupes dans $[10^{-11}, 20]$	0 groupe
^{239}Pu	1 groupe $[10^{-11}, 0.5]$	7 groupes dans $[10^{-11}, 20]$	0 groupe

TABLE 4 – Nombre de groupes d’énergie incidente du neutron pour décrire les covariances du spectre, dans les évaluations, et domaine couvert en énergie incidente (en MeV), dans le cas de JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 et JENDL-4.0, pour l’ ^{235}U , l’ ^{238}U et le ^{239}Pu .

Il y a donc encore peu de données concernant les covariances du spectre. De plus, le lien entre un spectre et sa matrice de covariance est rendu difficile à faire par le format des évaluations (voir annexe B sur ce sujet).

Le spectre et ses covariances sont importants dans beaucoup d’applications pour les réacteurs : échauffement en réacteur, flux sur la cuve, etc. Mieux évaluer le spectre, et mieux estimer les covariances associées aux évaluations, permet de déduire de manière plus rigoureuse les incertitudes associées à ces grandeurs.

Le premier chapitre de cette thèse résume les techniques de mesure du spectre, ainsi que certaines des mesures disponibles pour les noyaux fissionnants d’intérêt, notamment pour la fission induite par neutron thermique. On abordera également l’évolution de l’énergie moyenne des neutrons prompts avec l’énergie incidente. Dans le deuxième chapitre, on présentera les modèles les plus utilisés pour décrire les spectres. On décrira aussi le code FIFRELIN, qui simule toute la chaîne de désexcitation des fragments de fission, et qui permet donc de calculer entre autres le PFNS. On présentera une étude de la sensibilité du code à certains paramètres de modèle, comme la section efficace inverse du modèle de Weisskopf, ou le paramètre de densité de niveaux, afin de tenter de mieux reproduire le spectre avec FIFRELIN. Dans le troisième chapitre, on présentera les évaluations du spectre réalisés grâce au code CONRAD, dans le cadre de modèles analytiques simples, comme celui de Madland-Nix. Ceci implique un ajustement des paramètres de modèle pour reproduire les données mesurées. On détaillera le calcul de la matrice de covariance du spectre. Un traitement spécifique par la marginalisation, sera fait pour les incertitudes systématiques. Les résultats pour la fission de l’ ^{235}U et du ^{239}Pu induite par neutron thermique seront comparés à ce qui existe dans les évaluations internationales. Enfin, le quatrième chapitre sera consacré à l’étude de l’impact du spectre et de ses covariances sur le calcul du flux neutronique reçu par la cuve d’un réacteur. La cuve ne pouvant pas être changée, c’est le maintien de son intégrité qui conditionne la durée de fonctionnement d’un réacteur. Le calcul du flux neutronique reçu par la cuve, et l’estimation d’une incertitude réaliste associée, constituent par conséquent un enjeu considérable pour les industriels.

Chapitre 1

Revue des mesures de spectre

Le spectre des neutrons prompts de fission diffère suivant l'isotope qui fissionne. De plus, lorsqu'il s'agit d'une fission induite par neutron, l'énergie du neutron incident influence aussi le spectre des neutrons prompts. C'est pourquoi la majorité des mesures se font en bombardant une cible isotopiquement pure avec un faisceau mono-énergétique de neutrons : on qualifie ces mesures de « microscopiques ». Ces mesures font l'objet d'un regain d'intérêt ces dernières années, et ce pour plusieurs raisons. Premièrement, la perspective des futurs réacteurs de génération IV met en lumière le manque de données en ce qui concerne la fission induite par neutrons rapides (de plus d'une centaine de keV). D'autre part, la volonté de réduire les marges pour les réacteurs de génération III et IV, met en évidence le besoin de mesures mieux documentées avec une estimation plus précise des incertitudes et de leurs sources. Dans ce chapitre, on exposera la technique de mesure des spectres par temps de vol, après avoir rappelé le principe de la détection des neutrons. On présentera ensuite quelques unes des principales mesures de spectre.

1.1 Détection des neutrons et mesure de leur énergie

Le principe de la détection des particules subatomiques repose sur la réponse d'un milieu auquel la particule transfère son énergie. La réponse du milieu est transformée en signal électrique, qui une fois amplifié, devient détectable. Les réactions qui sont utilisées dans les détecteurs pour que la particule dépose son énergie sont basées sur l'interaction électromagnétique. N'étant pas concernés du fait de leur charge nulle, les neutrons ne sont pas détectés directement. Il faut d'abord passer par une réaction du neutron qui donne à l'état final une particule chargée en mouvement, donc capable d'exciter la matière présente dans le détecteur. La détection repose donc sur une réaction entre un neutron et un noyau dont on note n_A la densité atomique dans le détecteur. On note $\sigma(E)$ la section efficace de la réaction en fonction de l'énergie du neutron. La probabilité $P(E)$ qu'un neutron d'énergie E soit détecté, correspond à la probabilité qu'il ne traverse pas la longueur d du détecteur sans interaction, soit :

$$P(E) = 1 - e^{-n_A \cdot \sigma(E) \cdot d} \quad (1.1)$$

La réaction nous donne un produit détectable. Ce produit va céder au moins une partie de son énergie au milieu du détecteur. On parlera ici des deux types de réponse exploitées pour la détection des neutrons : l'ionisation et la scintillation.

Chambre à ionisation Il s'agit d'une chambre emplie d'un gaz. La particule chargée incidente interagit avec les électrons orbitaux du milieu. Dans le cas d'un photon, si son énergie est supérieure à l'énergie d'ionisation E_{ion} d'un atome de ce gaz, un électron de l'atome est arraché par absorption de ce photon. Dans le cas d'une particule chargée, une partie E_p de son énergie est cédée à un électron de l'atome par collision inélastique. Si $E_p > E_{\text{ion}}$, l'électron est arraché. Suite à l'ionisation, on a donc création d'une paire ion/électron (figure 1.1). Les énergies de première ionisation — c'est à dire de séparation de l'électron le moins lié — varient entre 5 et 30 eV pour la plupart des atomes. La chambre possède deux électrodes, maintenues à une différence de potentiel électrique dont la valeur varie selon la nature et l'énergie de la particule incidente que l'on cherche à détecter. Le champ électrique qui en résulte fait migrer les ions vers la cathode et les électrons vers l'anode. Le signal électrique ou *pulse* reçu, informe l'expérimentateur du passage d'une particule ionisante dans le détecteur. Le plus souvent, c'est la paroi extérieure de la chambre qui sert de cathode. Le principe de la détection des neutrons dans une chambre à fission (exemple de chambre à ionisation pour la détection des neutrons) est présenté dans la figure 1.2.

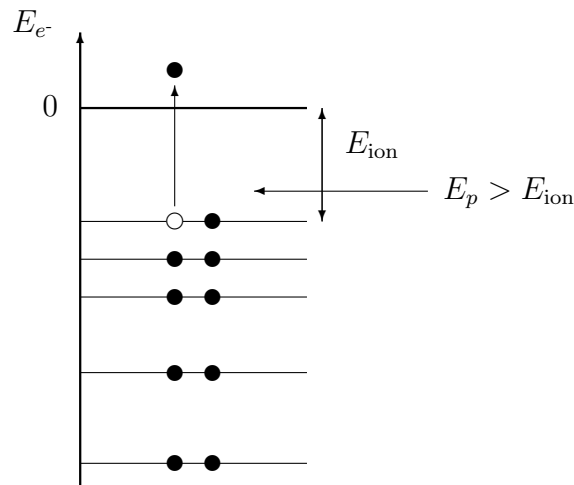


FIGURE 1.1 – Représentation schématisée des niveaux énergétiques des électrons dans un atome de la chambre à ionisation. Le 0 correspond à l'énergie à laquelle l'électron n'est plus lié à l'atome. L'énergie d'ionisation est l'énergie qu'il faut fournir pour arracher l'électron le moins lié, c'est à dire celui qui occupe le niveau occupé de plus haute énergie. L'ionisation a lieu si l'apport d'énergie de la particule ionisante est supérieur à cette énergie.

Scintillateur Les détecteurs à scintillation sont composés d'un milieu qui peut être liquide, gazeux ou solide. On en distingue deux types : les scintillateurs organiques et inorganiques. La détection des neutrons, comme on le verra, est d'autant plus efficace que les atomes qui composent le détecteur sont légers ; les détecteurs organiques sont donc les plus adaptés. Les scintillateurs inorganiques sont utilisés préférentiellement pour la détection des photons, comme le NaI(Tl), car ils sont faits d'atomes lourds ; la section efficace de détection des photons par les scintillateurs étant proportionnelle à Z^5 (pour l'effet photo-électrique). Le passage de la particule excite les électrons des molécules du milieu, idéalement sans provoquer d'ionisation car dans ce cas ce n'est pas le mouvement des électrons qui provoque le signal. Le schéma de niveau typique des électrons d'une molécule organique est donné dans

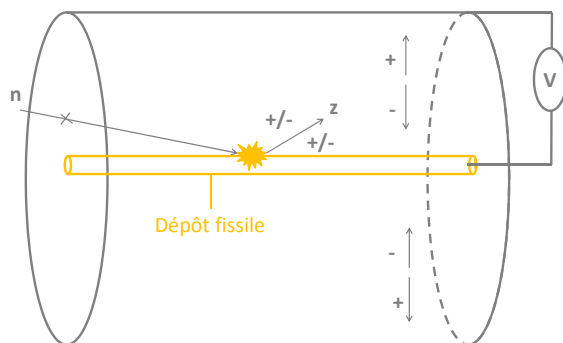


FIGURE 1.2 – Schéma du principe de la détection des neutrons dans une chambre à fission, qui est un exemple de chambre à ionisation. Le neutron incident va induire une fission sur le dépôt fissile (généralement sur l'anode). Le passage des fragments de fission ionise le gaz et crée des paires de charges. Ces charges migrent vers les électrodes et créent un *pulse* électrique.

la figure 1.3. On a des états électroniques, notamment les états singulets S_0 et S_1 ; à chacun sont associés plusieurs états vibrationnels. A température ambiante, les électrons sont dans l'état S_0 « fondamental ». L'énergie E_p de la particule incidente excite les électrons vers les états vibrationnels de S_1 . La désexcitation la plus probable se fait en deux temps : décroissance vers l'état S_1 « fondamental », puis décroissance vers l'un des états vibrationnels S_0 par émission d'un photon. Comme, à température ambiante, les électrons sont dans l'état S_0 fondamental, le photon émis ne correspond pas à une transition possible vers un niveau excité ; le photon ne sera donc pas réabsorbé par la suite. C'est ce photon qui constitue le rayonnement de scintillation. Il est ensuite converti en signal électrique et amplifié par un photo-multiplicateur couplé au scintillateur. Le principe est résumé sur la figure 1.4.

Dans le cas des détecteurs à ionisation et à scintillation, le passage du produit de la réaction que le neutron a induite, se traduit par la création d'un *pulse* électrique. La forme et l'amplitude de ce *pulse* nous donnent plusieurs informations sur la nature de la particule détectée et sur son énergie. Pour la détection des neutrons, on n'utilisera le plus souvent le détecteur que pour obtenir une information binaire, c'est à dire passage ou non d'un neutron. L'énergie du neutron est alors mesurée par temps de vol comme on le verra. En revanche, la forme du *pulse* sert à la discrimination entre les neutrons et les autres particules ayant pu provoquer une réponse du détecteur.

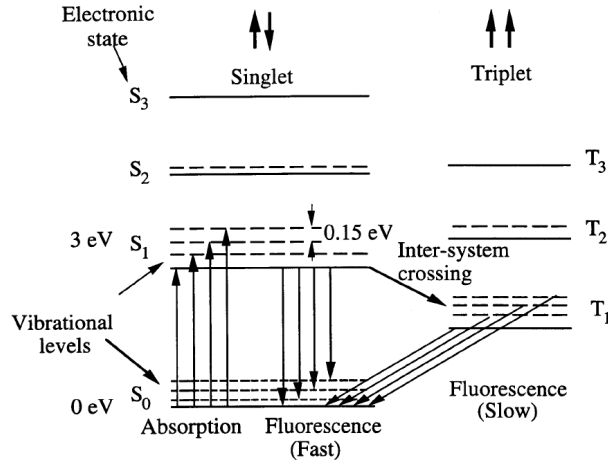


FIGURE 1.3 – Niveaux d'énergie des électrons dans une molécule organique (schéma de la référence [17])

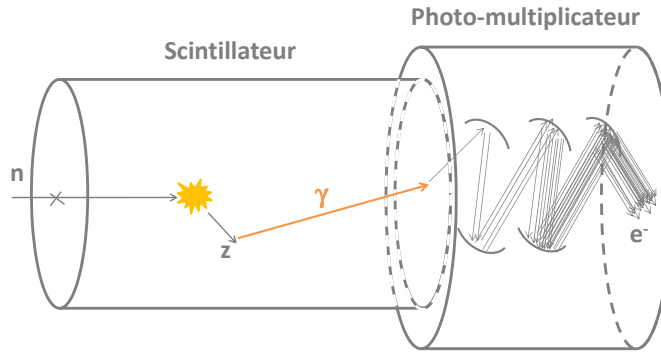


FIGURE 1.4 – Schéma du principe de la détection des neutrons dans un scintillateur couplé à un photo-multiplicateur. Le neutron incident va interagir avec le milieu du détecteur. Les produits de la réaction chargés et en mouvement, comme un proton diffusé dans les cas des détecteurs de proton de recul, excitent sur leur passage les électrons des molécules du détecteur. Le rayonnement de scintillation est converti en électron par effet photoélectrique dans le photo-multiplicateur. L'électron va se multiplier sur chaque dynode, le signal électrique sera ainsi amplifié d'un facteur 10^6 environ.

En fonction de l'énergie du neutron à détecter, le choix d'une réaction ou d'une autre se révélera plus ou moins adapté. Pour que la détection soit efficace, il faut d'une part que la section efficace soit suffisamment élevée pour les énergies des neutrons étudiés, et d'autre part, qu'une large part de l'énergie du neutron soit cédée au produit détectable de la réaction. Si l'énergie du neutron après la réaction est suffisante, il peut en provoquer d'autres en continuant son parcours dans le détecteur. Dans ce cas, les collisions multiples du même

neutron ayant lieu dans un temps très court comparé au temps de réponse d'un scintillateur (nano-seconde) ou d'une chambre à ionisation (micro-seconde), les signaux provenant de chacune des réactions vont s'ajouter et on observera un seul *pulse* de plus haute amplitude. Ce phénomène ne gêne donc pas la détection [35]. D'autre part, si l'on recherche seulement la présence ou non du neutron et pas son énergie, il importe peu que le neutron dépose toute son énergie ou seulement une partie dans le détecteur avant de fuir. L'essentiel pour la détection est que le neutron subisse au moins une réaction dans le détecteur. Les réactions neutroniques qui sont utilisées pour la détection des neutrons sont :

1. **Les réactions d'absorption** : (n,α) , (n,γ) , etc.. Dans ce cas c'est la particule ré-émise par le noyau composé qui sera détectée. Une réaction souvent utilisée pour la détection des neutrons lents est la réaction ${}^6\text{Li}(n,t)\alpha$, où t est un triton ${}^3\text{H}$, dans le cas de verres scintillateurs au lithium. La section efficace de cette réaction est présentée sur la figure 1.5.
2. **La diffusion élastique** (n,n) . Dans ce cas, le produit détectable est le noyau diffusé.
3. **La fission** (n,f) , dans les chambres à fission. Dans ce cas ce sont les fragments de fission qui provoquent le signal. On verra que dans les mesures par temps de vol, on utilise la chambre à fission afin de détecter les fragments.

On parlera ici plus spécialement de deux types de détecteurs : les détecteurs de proton de recul et les chambres à fission.

1.1.1 Le détecteur de proton de recul

Ces scintillateurs, très couramment utilisés pour la détection des neutrons rapides, reposent sur la diffusion élastique neutron-hydrogène $\text{H}(n,n)\text{H}$. Pour la diffusion d'un neutron d'énergie cinétique E sur un noyau de masse atomique A , l'énergie de recul E_r du noyau dans le référentiel du laboratoire s'écrit [35] :

$$E_r = \frac{4A}{(1+A)^2} \cos^2(\theta) E \quad (1.2)$$

où θ est l'angle entre la direction du noyau diffusé et la direction du neutron incident, dans le référentiel du laboratoire. On voit donc que le choix de l'hydrogène ($A = 1$) est celui qui maximise le transfert d'énergie cinétique au noyau diffusé, en l'occurrence un proton. L'efficacité de la détection sera alors maximale puisque c'est l'énergie du proton diffusé qui est utile à la détection. Ces détecteurs sont constitués de molécules organiques, qui se trouvent soit sous la forme liquide, soit sous la forme d'un cristal. Parmi les cristaux les plus utilisés, on trouve le stilbène ($\text{C}_{14}\text{H}_{12}$) et l'anthracène ($\text{C}_{14}\text{H}_{10}$). Dans le cas des détecteurs liquides, le rapport des densités d'hydrogène et de carbone est très impactant pour l'efficacité de la détection, car c'est principalement la diffusion sur l'hydrogène qui participe au rayonnement. Un cas représentatif est le détecteur NE-213, dans lequel ce rapport vaut 1.213. La figure 1.5 présente les sections efficaces de diffusion du neutron sur l'hydrogène et sur le carbone (pour la composition isotopique naturelle). On voit que la diffusion neutron-carbone est moins probable que la diffusion neutron-proton, et ce sur presque tout le spectre, en dehors de quelques résonances du carbone à haute énergie.

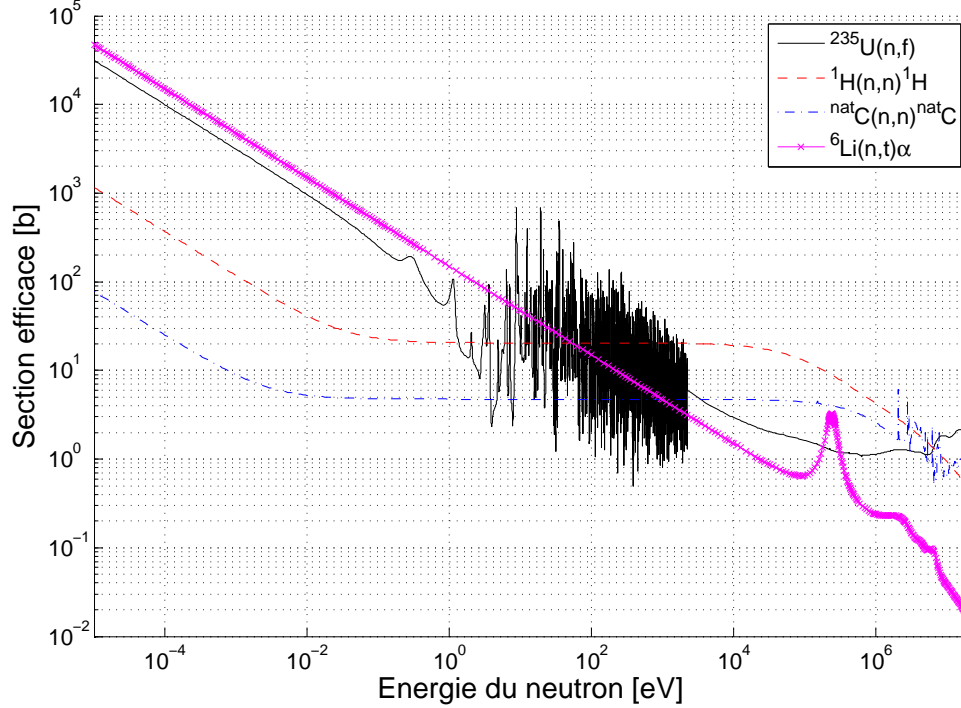


FIGURE 1.5 – Evaluation JEFF-3.2 [53] des sections efficaces de fission induite de l' ^{235}U (courbe pleine), de diffusion élastique neutron-hydrogène (traitillés rouges) et neutron-carbone (courbe bleue), et de la réaction $^6\text{Li}(n,t)\alpha$ (courbe rose).

1.1.2 La chambre à fission

La chambre à fission est un détecteur à gaz, généralement de l'argon. Il s'agit d'une chambre à ionisation dans laquelle est placé un dépôt fissile. Le neutron induit une fission, et les fragments de fission ionisent le gaz, provoquant un signal. L'efficacité de la détection est conditionnée par la section efficace de fission $\sigma_f(E)$ à l'énergie du neutron incident. Cette section efficace dépend du dépôt fissile, que l'on pourra adapter au type des neutrons que l'on veut détecter. Dans le cas des chambres à fission utilisées dans l'industrie, le dépôt fissile est toujours de l' ^{235}U . En effet, la manipulation de l' ^{235}U ne nécessite ni dépressurisation ni boîtes à gants. La figure 1.5 montre la section efficace de fission de l' ^{235}U en fonction de l'énergie du neutron incident. Elle est maximale pour les neutrons de basse énergie. La détection sera donc maximale pour des neutrons lents ou thermiques.

Remonter à l'énergie du neutron incident à partir du signal reçu requiert une bonne connaissance *a priori* du phénomène de la fission, notamment de ses rendements en masse, c'est à dire de la distribution en nombre de masse des fragments de fission. Ces informations étant mal connues pour certaines énergies du neutron, il s'avère délicat et peu fiable de déduire l'énergie du neutron que l'on a détecté du signal reçu. On préférera se servir de la chambre à fission comme d'une indication binaire : le neutron a été détecté ou n'a pas été détecté. Pour connaître l'énergie du neutron, une technique très utilisée est celle du temps de vol.

Comme on peut le voir sur la figure 1.5, la valeur des sections efficaces indique que les détecteurs basés sur le recul des protons sont utilisés préférentiellement aux chambres à fission

pour les neutrons d'énergie supérieure à 1 keV. La part des neutrons prompts de fission émis avec une énergie inférieure à 1 keV est de l'ordre de 10^{-3} %, c'est pourquoi les scintillateurs organiques sont les plus adaptés aux mesures de PFNS. De plus, ces détecteurs offrent une discrimination précise des neutrons et des gammas, ce qui se révèle capital dans la détection des particules prompts de fission [76].

1.1.3 Mesure de l'énergie par temps de vol

La technique de mesure de l'énergie d'un neutron par temps de vol, ou TOF pour « *time of flight* », requiert que l'on connaisse la position du neutron à deux instants distincts. Si on note \vec{x} la position du neutron, on doit donc connaître (\vec{x}_1, t_1) et (\vec{x}_2, t_2) . On en déduit directement l'énergie cinétique du neutron dans le référentiel du laboratoire :

$$E = \frac{1}{2} m_n \left(\frac{\vec{x}_2 - \vec{x}_1}{t_2 - t_1} \right)^2 \quad (1.3)$$

où m_n est la masse du neutron. Il faut donc un signal *start* et un signal *stop* qui définissent les instants t_1 et t_2 , pour lesquels la position est connue. La fin du temps de vol du neutron est simplement donné par le signal du détecteur de neutron. Le début du temps de vol, qui correspond à l'instant de la fission, est donné par la détection des fragments de fission. En effet, dans les mesures de PFNS, la cible est placée directement dans la chambre à ionisation qui sert de détecteur de fragments de fission. On a donc l'instant *start* donné par le détecteur de fragments de fission, et le signal *stop* donné par le détecteur de neutrons. En pratique, si le temps de réponse du détecteur de fragments est long, le signal de la détection des fragments arrive après celui de la détection des neutrons. Dans ce cas, il suffit d'inverser les instants *start* et *stop*. La méthode TOF permet une mesure précise de l'énergie du neutron. Si l'on note $d = (x_2 - x_1)$ la distance parcourue par le neutron et $t = (t_2 - t_1)$ son temps de vol, avec des incertitudes respectivement de Δd et Δt , alors l'incertitude relative sur E est :

$$\frac{\Delta E}{E} = 2 \sqrt{\left(\frac{\Delta d}{d} \right)^2 + \left(\frac{\Delta t}{t} \right)^2} \quad (1.4)$$

1.2 Dispositif général des expériences de mesure de spectre

Afin de détecter les neutrons prompts de fission et de mesurer leur énergie, il faut détecter également les fragments de fission en coïncidence avec les neutrons. Ceci est fait, d'une part pour discriminer les neutrons de fission des neutrons du bruit de fond, et d'autre part, afin de connaître l'instant d'émission des neutrons et ainsi calculer leur énergie à partir de leur temps de vol. La réaction de fission a lieu directement dans le détecteur de fragments : l'échantillon dont on veut étudier la fission est placé dans une chambre à ionisation. L'ensemble forme une chambre à fission, bien que dans ce cas le but ne soit pas de détecter le neutron incident, mais les fragments de la fission qu'il provoque. Si on étudie la fission induite par neutron, la cible est placée dans l'axe d'un faisceau de neutrons. Toutes les informations collectées sur les fragments de fission sont déduites de la forme (*pulse shape*) et de l'amplitude (*pulse height*) du signal de la chambre à fission.

Pour discriminer les neutrons des autres particules incidentes dans le détecteur de neutron, on se sert de la forme du *pulse* (*pulse shape discrimination*). Le *pulse* comporte une composante

« rapide » et une composante « lente » (voir figure 1.6). Le neutron a une composante lente plus importante, c'est ce qui permet de le reconnaître (figure 1.7). Le principe général de la détection des neutrons prompts de fission est résumé sur la figure 1.8.

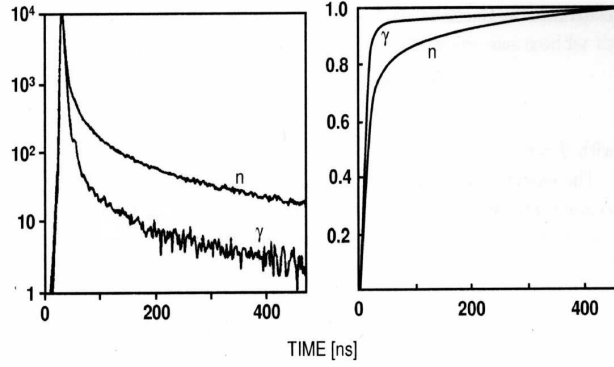


FIGURE 1.6 – Forme du *pulse* dans le cas d'un neutron et d'un photon incident (figure de la référence [44]).

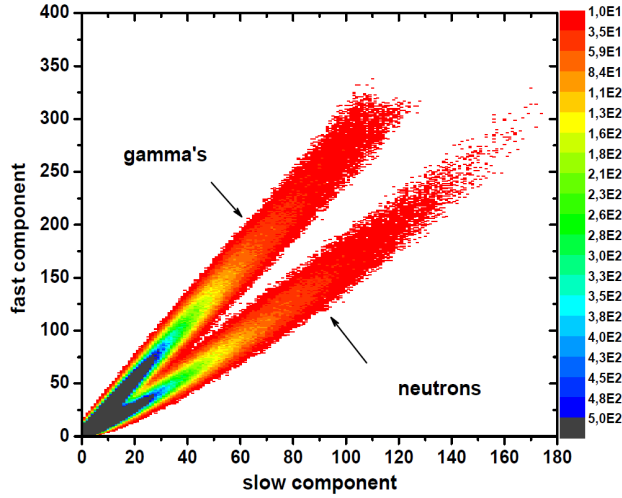


FIGURE 1.7 – Discrimination neutron-gamma par l'étude des composantes lentes et rapides du *pulse*, obtenue à l'aide d'un scintillateur NE-213 (figure de la référence [76]).

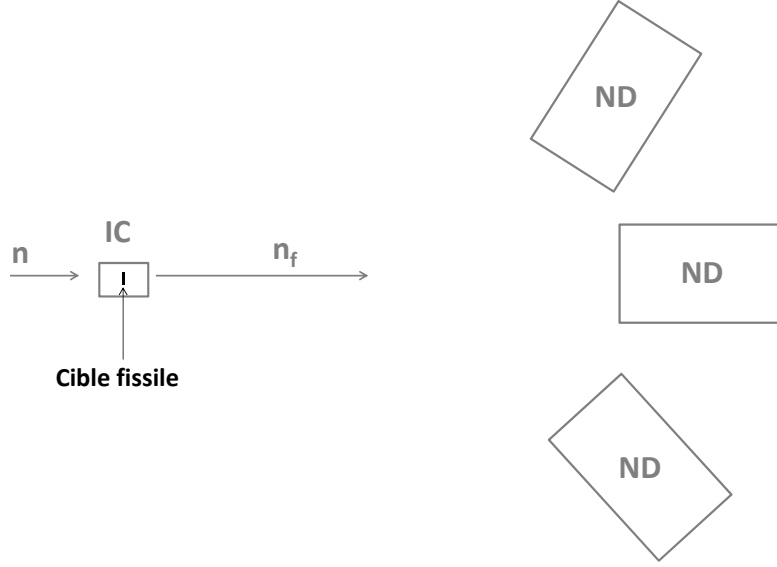


FIGURE 1.8 – Représentation schématique du principe de détection des neutrons prompts de fission. La cible est déposée dans la chambre à ionisation (IC) et dans le faisceau de neutron incident. La chambre à ionisation sert de détecteur pour les fragments de fission et donne ainsi le *start* du temps de vol des neutrons prompts de fission (n_f). Les détecteurs à neutrons (ND), basés sur le principe des scintillateurs couplés à des photo-multiplicateurs, détectent les neutrons prompts en coïncidence avec les fragments de fission. C’est le *stop* du temps de vol des neutrons, grâce auquel on déduit leur énergie cinétique via la relation 1.3.

1.3 Analyse des données

Lors d’une mesure, on détecte les « coups » reçus, c’est-à-dire le nombre de *pulses* détectés, en fonction du temps de mesure. Un certain nombre de corrections sont à appliquer au nombre de coups reçus, pour tenir compte des coïncidences accidentelles, ainsi que des différentes sources de biais dans la mesure. Après conversion des canaux-temps en canaux-énergie (formule du temps de vol 1.3), le nombre de coups par énergie du neutron $C(E)$ s’exprime :

$$C(E) = \epsilon(E) \cdot N_f \cdot \bar{\nu} \cdot \chi(E) + B(E) \quad (1.5)$$

où on a :

$\left \begin{array}{ll} \chi(E) & \text{le spectre des neutrons prompts de fission} \\ \epsilon(E) & \text{l'efficacité de détection à l'énergie } E \\ N_f & \text{le nombre total de fission ayant eu lieu} \\ \bar{\nu} & \text{la multiplicité moyenne totale des neutrons prompts} \\ B(E) & \text{le bruit de fond à l'énergie } E \end{array} \right.$

soit :

$$\chi(E) = \frac{C(E) - B(E)}{N_f \cdot \bar{\nu} \cdot \epsilon(E)} \quad (1.6)$$

Parmi les données les plus déterminantes pour l'analyse des mesures, se trouvent l'efficacité du détecteur de neutrons, et le bruit de fond de la mesure. Le bruit de fond peut être mesuré en se plaçant en dehors du faisceau de neutrons. Généralement, l'efficacité du détecteur est mesurée avant la mesure de spectre, en bombardant le détecteur avec une source de neutrons dont le spectre est connu. Souvent, il s'agit d'une source de ^{252}Cf dont le spectre de neutrons prompts pour la fission spontanée a fait l'objet de nombreuses mesures validées par des mesures d'irradiation, ce qui en fait un standard international. En observant la réponse du détecteur, on obtient l'efficacité du détecteur $\epsilon(E)$ pour un neutron d'énergie E . Cependant, le spectre obtenu dépend alors de l'évaluation que l'on a considérée pour le californium, et la seule grandeur indépendante de cette évaluation est le rapport des spectres. C'est pourquoi l'efficacité est en général également calculée via des simulations Monte-Carlo en tenant compte de la composition et de la géométrie du détecteur. Parmi les codes utilisés, outre le code « généraliste » MCNP [80], on trouve des codes spécifiques aux calculs d'efficacité de détection des neutrons, comme SCINFUL [18] pour les scintillateurs, ou NEFF [19] qui est spécifique au scintillateur liquide organique NE-213.

Comme on peut le voir, la mesure du spectre est indissociable de celle de la multiplicité. Une fois le signal corrigé du bruit et de l'efficacité, il faut considérer le spectre du nombre de coups reçus comme le produit de deux contributions : celle de la **forme** $\chi(E)$, qui correspond au spectre, et celle de la **norme** N , à laquelle contribue notamment la multiplicité. Se pose alors la question de la dissociation de ces deux informations. Pour pouvoir comparer les mesures entre elles, il faut les renormaliser. Dans le cas idéal où la mesure couvrirait tout le spectre en énergie, cette procédure ne modifierait pas la forme du spectre. En effet, la norme du spectre lorsque l'on considère tout le domaine en énergie vaut 1 :

$$N_\chi^\infty = \int_0^\infty \chi(E) dE = 1 \quad (1.7)$$

Il suffit alors de renormaliser les données à un. En pratique, on ne mesure le spectre que sur une plage restreinte en énergie $[E_{\min}, E_{\max}]$. On doit alors renormaliser les données à la norme $N_\chi([E_{\min}, E_{\max}])$ du spectre dans cette plage énergétique :

$$N_\chi([E_{\min}, E_{\max}]) = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \chi(E) dE \quad (1.8)$$

Pour déduire le spectre $\chi(E)$ de la mesure de $C(E)$, il faut donc faire des hypothèses sur la valeur de $N_\chi([E_{\min}, E_{\max}])$. Si l'on note C' le nombre de coups corrigé du bruit et de l'efficacité :

$$C'(E) = \frac{C(E) - B(E)}{\epsilon(E)} \quad (1.9)$$

alors on a :

$$\chi(E) = \frac{N_\chi([E_{\min}, E_{\max}])}{N_{C'}([E_{\min}, E_{\max}])} C'(E) \quad (1.10)$$

où $N_{C'}([E_{\min}, E_{\max}])$ est l'intégrale du nombre de coups corrigé du bruit de fond et de l'efficacité, sur la plage en énergie couverte par la mesure. La valeur de N_χ n'est pas seulement un facteur d'échelle pour le domaine en énergie $[E_{\min}, E_{\max}]$. En effet, comme l'intégrale sur

tout le domaine en énergie est égale à 1 quelle que soit la forme du spectre, la valeur de N_χ conditionne la forme du spectre sur le reste du domaine. En ce sens, dans une mesure de spectre, la norme et la forme sont inextricablement liées.

Afin d'illustrer ceci, on a « fabriqué » des données fictives représentant des mesures de spectre en unités arbitraires, entre 500 keV et 5 MeV. Dans un premier temps, on considère la norme à $N_0 = 5000$ unités arbitraires, sur le domaine considéré. Le spectre expérimental est alors :

$$\chi^0(E) = \frac{N_\chi([500 \text{ keV}, 5 \text{ MeV}])}{N_0} C(E) \quad (1.11)$$

On estime $N_\chi([500 \text{ keV}, 5 \text{ MeV}])$ via une maxwellienne de paramètre $T = 1.32 \text{ MeV}$. Les données ont été fabriquées de façon à ce que la maxwellienne qui représente le mieux $\chi^0(E)$ soit celle de paramètre $T_0 = 1.32 \text{ MeV}$. Pour les mêmes données, nous estimons à présent la norme à $N_1 = 5500$ unités arbitraires. Le nouveau spectre expérimental est :

$$\chi^1(E) = \frac{N_\chi([500 \text{ keV}, 5 \text{ MeV}])}{N_1} C(E) = \frac{N_0}{N_1} \chi^0(E) \quad (1.12)$$

En utilisant le code CONRAD pour ajuster une maxwellienne sur ce nouveau spectre $\chi^1(E)$ (voir chapitre 3), on trouve le paramètre optimal $T_1 = 1.27 \text{ MeV}$. L'erreur de norme sur un domaine fini (de 500 keV à 5 MeV) a donc effectivement modifié la forme du spectre déduit des données. On aboutit à un spectre moins dur. La figure 1.9 montre les données fictives ainsi que les deux spectres ajustés pour chacune des deux normes considérées. Cet exemple est volontairement exagéré, l'erreur de norme considérée est de 10%, tandis que les mesures ont généralement une incertitude de normalisation autour de 1 à 5%.

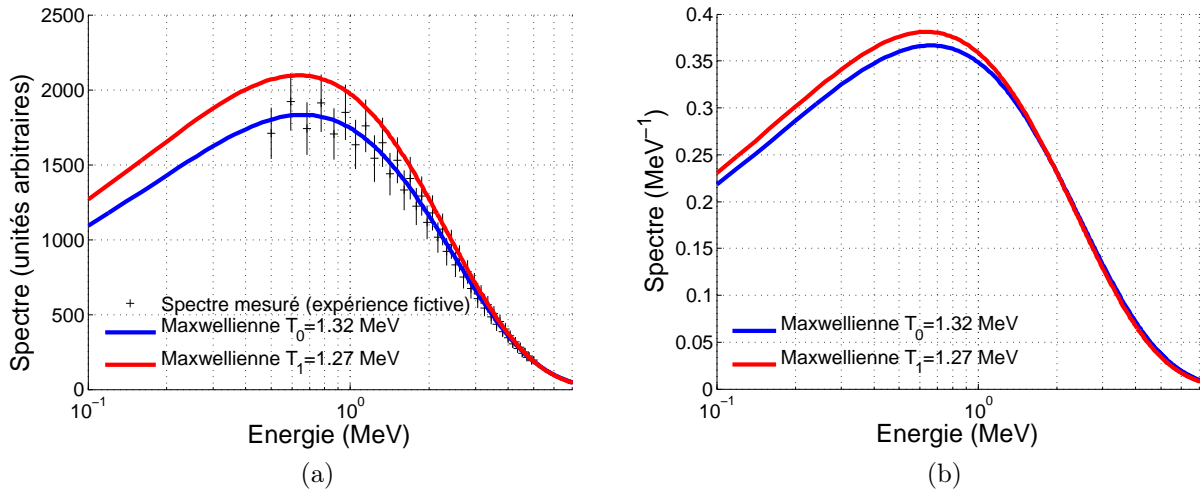


FIGURE 1.9 – Etude de l'effet de la normalisation des données mesurées sur la forme du spectre déduit de ces données. (a) Mesures fictives, avec les maxwelliennes ajustées respectivement pour $N_0 = 5000$ et $N_1 = 5500$. (b) Maxwelliennes issues des ajustements respectivement pour $N_0 = 5000$ et $N_1 = 5500$.

1.4 Revue des expériences disponibles

Nous allons ici présenter les différentes mesures de PFNS qui ont été utilisées dans ce travail de thèse. La liste n'est pas exhaustive ; certaines mesures présentant des incohérences entre différentes publications, ou pour lesquelles trop peu d'informations sont disponibles, ne seront pas considérées ici. La recherche de mesures pour les réactions nucléaires est grandement facilitée par la base EXFOR de l'AIEA [58] et son moteur de recherche. Cette base recense une grande partie des expériences, notamment de réactions de neutrons, réalisées par les laboratoires du réseau international NRDC, et les présente dans un format unique qui permet une bonne cohérence entre les données. Chaque mesure est identifiée dans EXFOR par un numéro. Quand un fichier EXFOR est disponible pour les mesures que nous allons décrire, nous précisons son identifiant dans les tables 1.1 et 1.2, qui récapitulent les différentes expériences présentées. L'enjeu de la mesure des spectres est d'une part d'obtenir une bonne précision, mais aussi de couvrir le domaine énergétique le plus large possible. Cela demande d'avoir des seuils de détection suffisamment bas. Les seuils sont de l'ordre de la centaine de keV pour la plupart des mesures. Certaines mesures obtiennent du signal à plus basse énergie (quelquefois de l'ordre de 10 keV), cependant les incertitudes à ces énergies sont très élevées.

Fission spontanée du ^{252}Cf

Le ^{252}Cf fissionne spontanément. Son temps de demi-vie est de 2.645 ans et son rapport de branchement pour la fission spontanée est de 3.09%. Quelques ng de ^{252}Cf suffisent donc pour obtenir un taux de plus d'un millier de fissions par seconde. Pour cette raison, et pour le fait que la mesure ne nécessite pas de disposer d'un faisceau de neutrons, le spectre de la fission spontanée du californium a été beaucoup étudié. Les mesures ont été validées par des mesures d'irradiation, qui consistent à bombarder une cible avec une source de ^{252}Cf , en choisissant la cible de façon à provoquer une réaction à seuil. On peut donc connaître précisément le nombre de neutrons émis par la source au-dessus du seuil. En répétant ces mesures pour diverses réactions ayant des seuils différents, on obtient une validation du spectre de la source. Grâce à cette validation, le PFNS de la fission spontanée du ^{252}Cf est un standard international. L'évaluation la plus utilisée est celle de Mannhart [49] réalisée en 1989, celle-ci s'appuie sur une compilation des mesures disponibles à l'époque, et a elle-même été testée par mesures d'activation. En tant que standard, le spectre de la fission spontanée du californium sert à calibrer les détecteurs, ainsi que de référence pour mesurer les spectres. On représente parfois le PFNS comme un rapport à celui du ^{252}Cf . Cependant, ces représentations prêtent à confusion si l'évaluation ou la mesure utilisée pour le spectre du ^{252}Cf n'est pas explicitement donnée.

Fission induite par neutron thermique

Les neutrons dits « thermiques » sont des neutrons considérés comme lents. On désigne généralement par ce terme les neutrons en équilibre thermodynamique avec un milieu de température autour de 300 K, soit $E_{\text{th}} = k_B T = 25.3 \text{ meV}$. L'eau d'un REP a une température autour de 600 K, les neutrons thermalisés ont donc une énergie autour de 50 meV et sont considérés comme thermiques. Dans le cas de l' ^{235}U , élément fissile d'importance pour les réacteurs, on a vu sur la figure 1.5 que la section efficace de fission induite par neutron est plus élevée pour un neutron incident thermique que pour un neutron incident plus énergétique.

C'est la raison pour laquelle on choisit, dans les réacteurs à eau, de thermaliser les neutrons. La mesure des spectres dans la fission thermique est donc importante pour les applications aux réacteurs à eau. On énumère ici quelques unes des mesures disponibles.

Expérience de l'IRMM Les mesures réalisées par N. Kornilov, F.-J. Hambsch *et al* [38] du JRC-IRMM (Joint Research Center, Institute for Reference Materials and Measurements) de Geel (Belgique), ont été effectuées en Hongrie en septembre et octobre 2008 dans le flux de neutrons thermiques du Budapest Research Reactor. La mesure concernait le spectre de neutrons prompts de fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique (100 K). La mesure de l'énergie des neutrons prompts a été effectuée par temps de vol, sur une distance de vol de 3 mètres. Les détecteurs de neutrons utilisés, des LS-301, sont des détecteurs de proton de recul à scintillation, de type NE-213. Le dispositif expérimental est similaire à celui présenté sur la figure 1.8.

En plus de la cible d' ^{235}U , une couche de ^{252}Cf a été placée simultanément dans la chambre à ionisation. L'acquisition de données permet de savoir si les fragments de fission détectés sont issus d'une fission du ^{252}Cf ou de l' ^{235}U . L'efficacité de la chaîne de détection est déterminée expérimentalement d'après les événements de fission du ^{252}Cf , et comparée à des calculs NEFF. L'accord entre les efficacités calculée et mesurée étant très bon, c'est l'efficacité mesurée qui a servi à déduire le PFNS de l' ^{235}U . La mesure comporte aussi une étude de l'angle d'émission des neutrons prompts, puisque trois détecteurs de neutrons ont été disposés à des angles différents. Les trois détecteurs donnent un spectre très similaire.

Mesures de Yufeng *et al.* Pour cette mesure, faite en 1989 par W. Yufeng *et al.*, un échantillon d' ^{235}U a été placé dans le flux de neutrons thermiques du réacteur à eau lourde de l'Institut pour l'Energie Atomique de Pékin (Chine). La distance de vol était de 3.17 m, les détecteurs à neutrons étaient des ST-451 (scintillateurs liquides). La configuration est donc proche de celle utilisée par l'équipe de l'IRMM.

Mesures de A. Lajtai *et al.* Le flux de neutrons thermiques utilisé pour la mesure de A. Lajtai *et al.* en 1985 est celui du Budapest Research Reactor. La mesure de l'énergie a été faite par temps de vol et concernait la fission induite de l' ^{233}U , de l' ^{235}U et du ^{239}Pu . Des verres scintillateurs en lithium NE-912 ont été utilisés pour détecter les neutrons [37]. Le principe de ces détecteurs est basé sur la réaction $^6\text{Li} + n \rightarrow \alpha + ^3\text{H}$, et c'est le triton qui sert à la détection. Il s'agit donc d'un scintillateur inorganique, généralement plutôt utilisé pour la détection des neutrons lents (voir la section efficace de réaction sur la figure 1.5). Une chambre à ionisation remplie d'argon a servi de détecteur pour les fragments. D'après le fichier EXFOR, la mesure de l'efficacité a été effectuée grâce à une source de ^{252}Cf , dont le PFNS pour la fission spontanée a été supposé maxwellien de paramètre 1.42 MeV, ce qui est une approximation très forte compte tenu des différences entre l'évaluation de Mannhart du spectre du ^{252}Cf et une maxwellienne.

Expériences de Dimitrovgrad Une série de mesures de PFNS a été réalisée entre 1981 et 1985 au Research Institute of Atomic Reactors de Dimitrovgrad en Russie, notamment par V.N. Nefedov, B.I. Starostov, A.F. Semenov et A.A. Boytsov (qu'on trouve parfois orthographié « Bojcov »). Toutes effectuées par temps de vol dans le flux de neutrons thermiques du réacteur SM-2, ces mesures concernent les fissions thermiques de l' ^{233}U , de l' ^{235}U et du

^{239}Pu , ainsi que la fission spontanée du ^{252}Cf . Peu de documents en anglais sont disponibles concernant ces expériences. La publication des expériences de 1981 a cependant été traduite par l'AIEA [70]. Deux séries de mesures sont effectuées : une première en utilisant un détecteur à scintillation-ionisation (GSDIC), dans lequel les neutrons prompts provoquent un flash et les fragments un pulse d'ionisation, et une deuxième série en utilisant une chambre à ionisation pour détecter les neutrons. Dans les expériences de 1985, cette deuxième série utilise trois scintillateurs différents pour détecter les neutrons : un anthracène, un stilbène et un plastique. La description des expériences de 1983 peut être trouvée dans les références [54] et [69] (non traduites).

Les spectres expérimentaux mentionnés sont présentés comme un rapport à une maxwellienne sur les figures 1.10, 1.11 et 1.12 pour les fissions thermiques de l' ^{235}U , de l' ^{233}U et du ^{239}Pu respectivement. Une comparaison avec les spectres des évaluations internationales sera donnée dans le chapitre 3. Dans le cas de l' ^{233}U , on observe de grandes contradictions entre les mesures. Pour l' ^{235}U et le ^{239}Pu , pour lesquels on a davantage de mesures, on observe que l'écart du spectre à la maxwellienne devient très grand au-dessus de 5 MeV. A basse énergie, jusqu'à plusieurs centaines de keV, les mesures présentent des contradictions et souffrent d'incertitudes élevées.

Fission induite par neutron rapide

Le besoin de réduire les marges en ce qui concerne les futurs réacteurs de génération IV, a conduit ces dernières années à un regain d'intérêt pour la fission induite par neutrons rapides. Nous allons énumérer ici certaines mesures de spectre réalisées pour la fission rapide, c'est-à-dire induite par des neutrons d'énergie supérieure à quelques centaines de keV. On peut produire un faisceau mono-énergétique de neutrons rapides en bombardant une cible avec un faisceau mono-énergétique de protons. Par exemple, en bombardant une cible de lithium avec des protons de 2.26 MeV, on obtient un faisceau de neutrons de 0.53 MeV, c'est ce qui a été utilisé dans l'expérience de Johansson et Holmqvist [34].

Expériences des années 1970 Plusieurs séries de mesures utilisant des faisceaux mono-énergétiques de neutrons ont eu lieu durant les années 1970. Les mesures réalisées à Geel (Belgique) par Islam et Knitter [33] en 1972 pour des neutrons incidents de 0.4 MeV sur l' ^{235}U , puis par Knitter en 1975 pour des neutrons incidents de 0.215 MeV sur le ^{239}Pu . Johansson et Holmqvist [34] mesurent à Nyköping (Suède) en 1976 le spectre de l' ^{235}U pour des neutrons incidents de 530 keV. On peut noter aussi les mesures de Smith *et al.* de 1980 à Argonne (Etats-Unis), pour le spectre de la fission de plusieurs isotopes, induite par des neutrons de 525 keV.

Expériences des années 1990 On peut noter deux expériences russes réalisées dans les années 1990, mesurant le spectre de l' ^{235}U pour deux énergies incidentes distinctes. La première, publiée en 1991 par Boikov *et al.*, réalisée à Saint-Petersbourg, met en jeu des énergies incidentes de 290 keV et 14.7 MeV et la mesure s'étend à l' ^{238}U et au ^{232}Th . La deuxième mesure, publiée en 1994 par Trufanov *et al.* et faite à Obninsk, ne concerne que l' ^{235}U pour des énergies incidentes de 500 keV et 5 MeV. En 1995, Staples *et al.* [68] publient leurs mesures pour l' ^{235}U et le ^{239}Pu , pour des énergies du neutron incident de 500 keV et 3.5 MeV.

Années 2010 : collaboration CEA/DAM-LANL Une collaboration entre le CEA/DAM et le Los Alamos National Laboratory (Etats-Unis) a donné lieu notamment à des mesures de spectres rapides pour l' ^{235}U et le ^{239}Pu , sur l'installation FIGARO au WNR/LANSCE. Le flux de neutrons du WNR est produit en bombardant une cible de tungstène avec des protons de 800 MeV ; il en résulte un flux de neutrons de spectre continu allant de 100 keV à plusieurs centaines de MeV, piqué à 2 MeV. Pour ces mesures, le faisceau de neutrons incidents n'étant pas mono-énergétique, la technique du double temps de vol a été utilisée, c'est-à-dire que l'on mesure l'énergie du neutron sortant mais aussi celle du neutron incident par temps de vol. Les mesures publiées en 2011 par Noda *et al.* [55] concernent le spectre pour des neutrons incidents d'énergie allant de 1 à 8 MeV. Ces mesures, ayant de larges incertitudes dues à un bruit de fond important, ont été répétées dans le cas du ^{239}Pu , avec une meilleure précision, et pour des énergies incidentes allant cette fois jusqu'à 200 MeV. Ces nouvelles mesures ont été publiées en 2014 par Châtillon *et al.* [15].

Il serait difficile de comparer entre eux tous ces spectres mesurés pour des énergies incidentes différentes. On se bornera donc à montrer sur les figures 1.13 et 1.14 l'évolution de l'énergie moyenne des neutrons prompts de fission en fonction de l'énergie du neutron incident, dans le cas de l' ^{235}U et du ^{239}Pu . Ces valeurs proviennent soit de la base EXFOR, soit de la compilation faite par Staples *et al.* [68]. Elles sont obtenues en approximant le spectre expérimental soit par une maxwellienne, soit par un spectre de Watt (voir chapitre 2 sur la modélisation du spectre). On peut observer que les grandes incertitudes liées à ces valeurs rendent difficile une interpolation entre les énergies incidentes. Sur la figure, on représente aussi l'évolution de l'énergie moyenne du spectre dans les évaluations. On voit clairement que l'énergie moyenne prédite par les évaluations chute pour certaines valeurs de l'énergie incidente. Ces valeurs correspondent aux énergies incidentes auxquelles s'ouvrent les voies de fission d'ordres supérieurs (fission de seconde chance, de troisième chance, etc.). En effet, plus l'énergie incidente est élevée, plus le noyau fissionnant a d'énergie d'excitation qui sera évacuée entre autres par les neutrons prompts, d'où la pente globalement positive de l'énergie moyenne en fonction de l'énergie incidente. En revanche, lorsque cette énergie devient suffisante pour qu'un neutron soit émis par le noyau composé avant de fissionner (c'est la fission de seconde chance), ce neutron emporte une part de l'énergie, qui ne sera plus disponible pour l'émission des neutrons après la fission. Pour une énergie incidente donnée, l'énergie moyenne pour une fission de seconde chance sera donc plus faible que dans le cas d'une fission de première chance. A l'énergie incidente pour laquelle la part des fissions de seconde chance devient importante, l'énergie moyenne du spectre chute. Il en est de même pour les fissions d'ordres supérieurs. Les données mesurées confirment cette tendance (données de Noda *et al.* et de Châtillon *et al.*). Les évaluations ne vont pas au-delà de 20 MeV d'énergie incidente (sauf JEFF-3.2 qui va jusqu'à 30 MeV). Les mesures de Châtillon *et al.*, qui vont jusqu'à 200 MeV d'énergie incidente, mettent en lumière d'autres chutes, notamment autour de 22 MeV et 30 MeV.

Auteurs	Année	Système étudié	Identifiant EXFOR	Source de neutrons	Détecteur de neutrons	Domaine étudié (MeV)
N. Kornilov <i>et al.</i> [38]	2010	$^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	31692002	BRR (Budapest, Hongrie)	LS-301 (organique liquide)	0.7 - 11.8
W. Yufeng <i>et al.</i>	1989	$^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	32587002	réacteur de l'IEA (Pékin, Chine)	ST-451 (organique liquide)	0.56 - 15.35
A. Lajtai <i>et al.</i>	1985	$^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	30704002 30704003 30704004	BRR (Budapest, Hongrie)	NE-912 (verre lithium)	0.03 - 3.86
B.I. Starostov <i>et al.</i>	1985	$^{252}\text{Cf}(0,\text{f})$ $^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	40930002 40930004-10-11-12 40930006-13-14-15 40930008	SM-2 (Dimitrovgrad, Russie)	anthracène, stilbène, plastique, GSDIC	0.02 - 11
V.N. Nefedov <i>et al.</i> [54]	1983	$^{252}\text{Cf}(0,\text{f})$ $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	40871005 40871007-8 40871006	SM-2 (Dimitrovgrad, Russie)	cristal d'anthracène	0.04 - 5
B.I. Starostov <i>et al.</i> [69]	1983	$^{252}\text{Cf}(0,\text{f})$ $^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	40872002 40872005 40872004 40872003	SM-2 (Dimitrovgrad, Russie)	scintillateur plastique	2 - 11
B.I. Starostov <i>et al.</i> [70]	1981	$^{252}\text{Cf}(0,\text{f})$ $^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	-	SM-2 (Dimitrovgrad, Russie)	GSDIC, IC	0.01 - 10

TABLE 1.1 – Mesures par temps de vol de PFNS utilisant des neutrons thermiques

Auteurs	Année	Système étudié	Identifiant EXFOR	Energie incidente (MeV)	Source de neutrons	Détecteur de neutrons	Domaine étudié (MeV)
A. Châtillon <i>et al.</i> [15]	2014	$^{239}\text{Pu}(\text{n},\text{f})$	14379002	1 - 200	WNR (Los Alamos, USA)	FIGARO (organique liquide)	0.3 - 8.25
S. Noda <i>et al.</i> [55]	2011	$^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$ $^{239}\text{Pu}(\text{n},\text{f})$	14290002 14290003	1 - 8	WNR (Los Alamos, USA)	FIGARO (organique liquide)	1.5 - 9.5 0.8 - 9.5
P. Staples <i>et al.</i> [68]	1995	$^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$ $^{239}\text{Pu}(\text{n},\text{f})$	13982002 13982003	0.5 - 3.5	accélérateur de Lowell (Massachusetts, USA)	scintillateur liquide	0.6 - 16
A.M. Trufanov <i>et al.</i>	1994	$^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$	41162003	0.5, 5	accélérateur KG-2,5 (Obninsk, Russie)	cristal de stilbène	0.35 - 14
G.S. Boikov <i>et al.</i>	1991	$^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$ $^{238}\text{U}(\text{n},\text{f})$ $^{232}\text{Th}(\text{n},\text{f})$	41110009 41110010 41110008	2.9, 14.7	NG-400 (St-Petersbourg, Russie)	cristal de stilbène	0.2 - 12
A. Smith <i>et al.</i> [66]	1980	$^{233}\text{U}(\text{n},\text{f})$ $^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$ $^{239}\text{Pu}(\text{n},\text{f})$ $^{240}\text{Pu}(\text{n},\text{f})$	-	0.525 0.525 0.525 0.850	accélérateur (Argonne, USA)	scintillateurs organiques	1 - 8
P.I. Johansson et B. Holmqvist [34]	1976	$^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$	20175003	0.53	accélérateur Studsvik (Nyköping, Suède)	organique liquide	0.6 - 15
H.-H. Knitter	1975	$^{239}\text{Pu}(\text{n},\text{f})$	20576003	0.215	accélérateur de Geel (Belgique)	NE-224 (liquide)	0.3 - 14
M.M. Islam et H.-H. Knitter [33]	1972	$^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$	20385003	0.4	accélérateur de Geel (Belgique)	NE-102A (plastique)	0.5 - 7

TABLE 1.2 – Mesures par temps de vol de PFNS utilisant des neutrons rapides

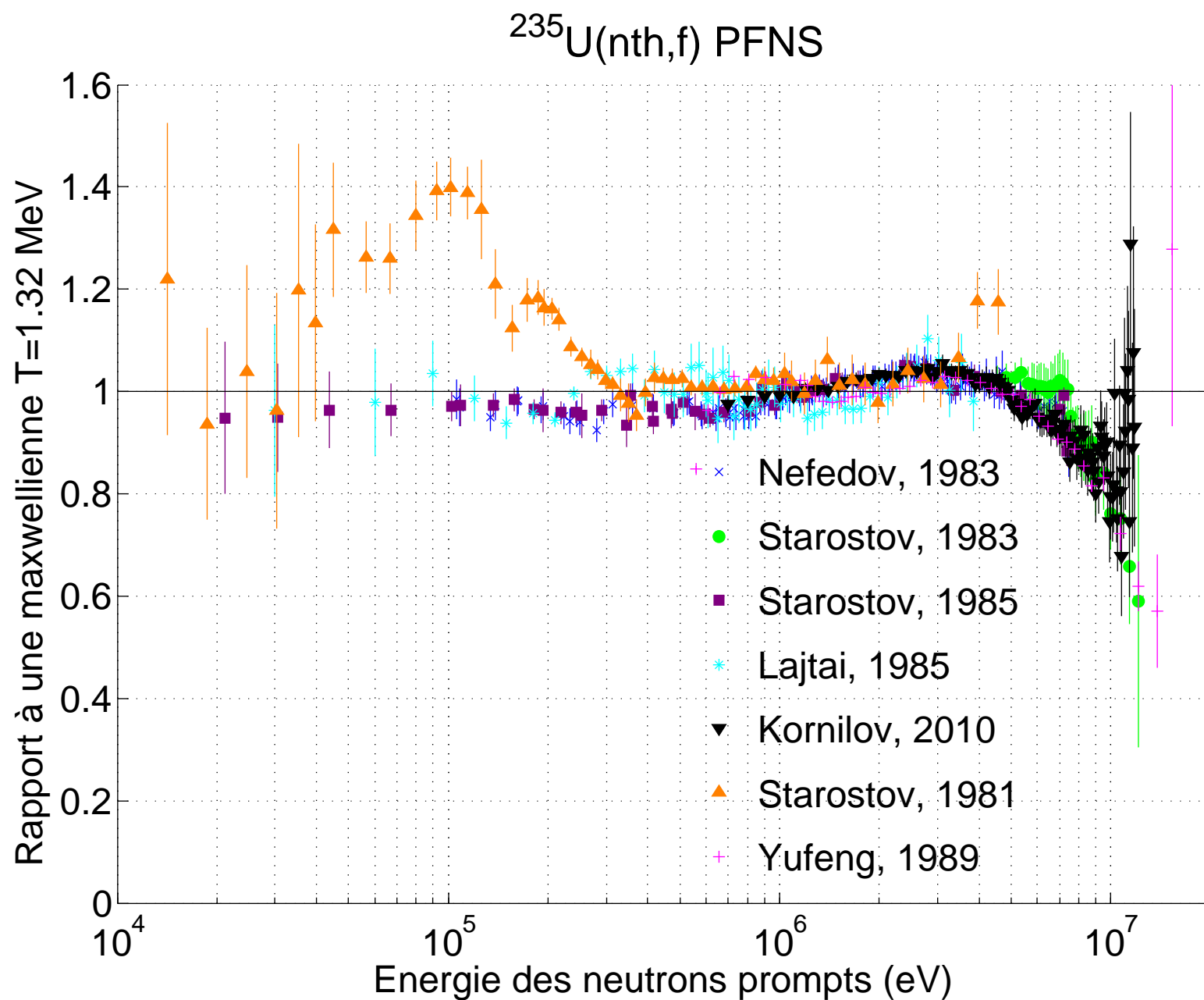


FIGURE 1.10 – Mesures par temps de vol du spectre de la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique

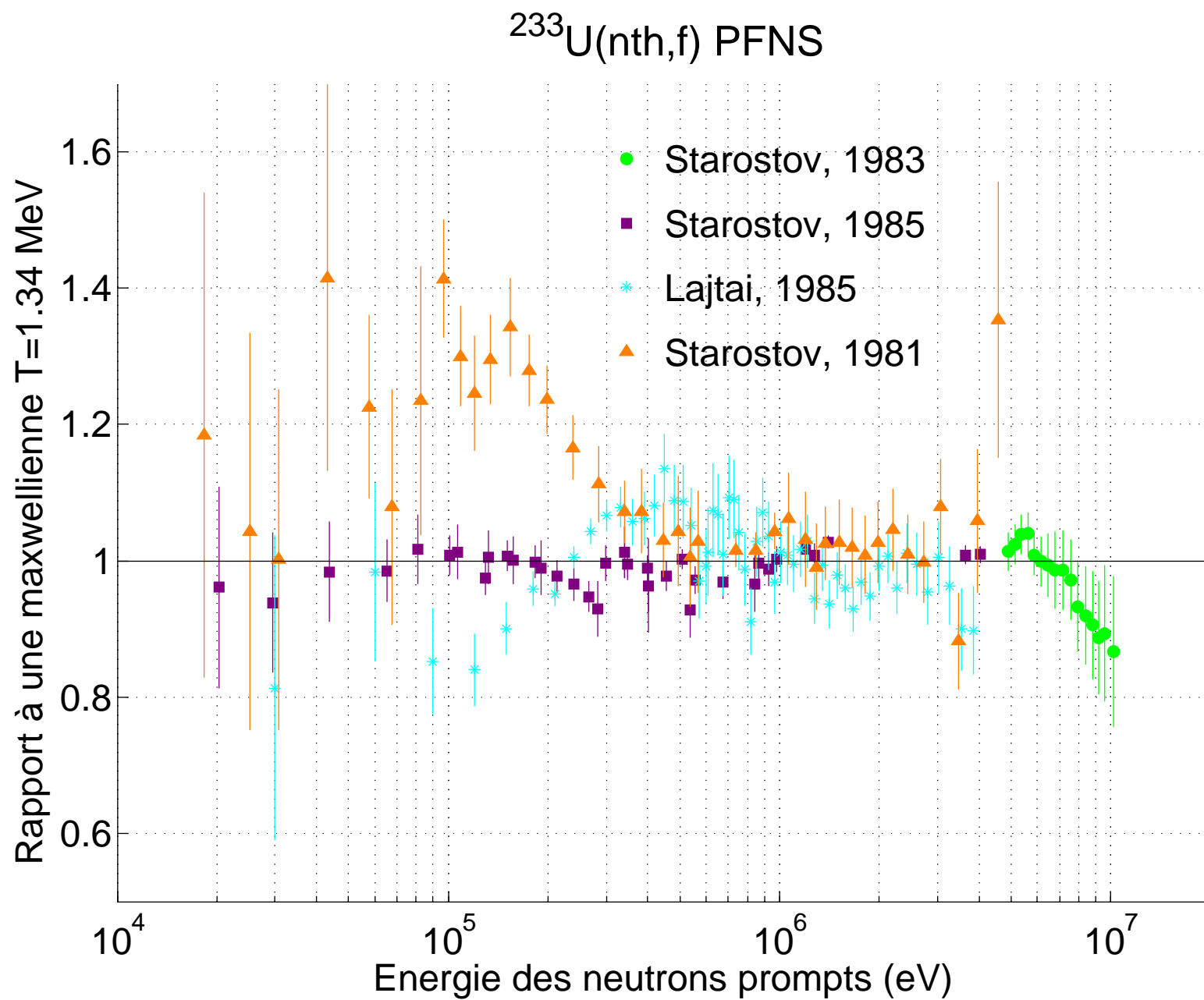


FIGURE 1.11 – Mesures par temps de vol du spectre de la fission de l' ^{233}U induite par neutron thermique

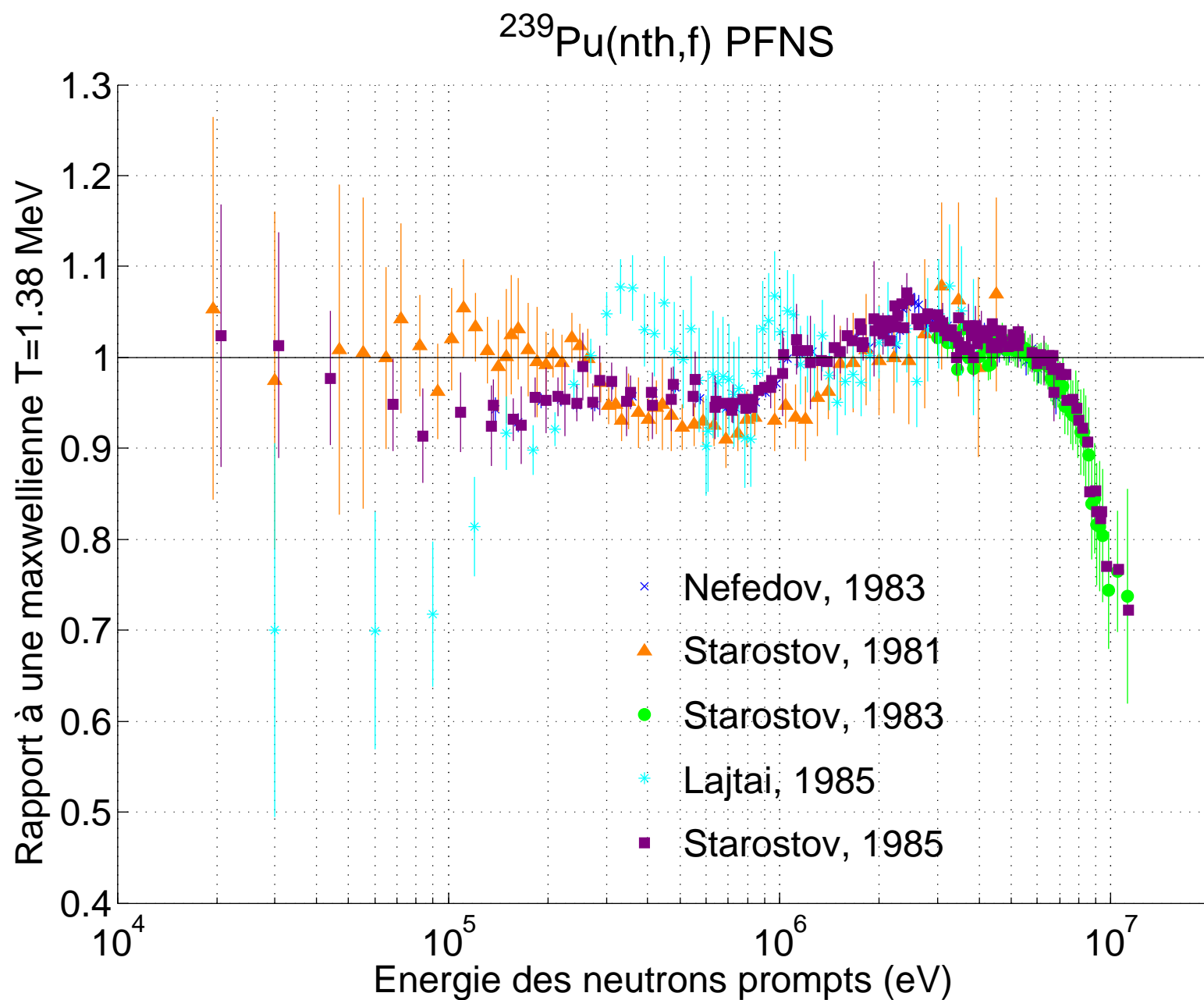


FIGURE 1.12 – Mesures par temps de vol du spectre de la fission de l' ^{239}Pu induite par neutron thermique

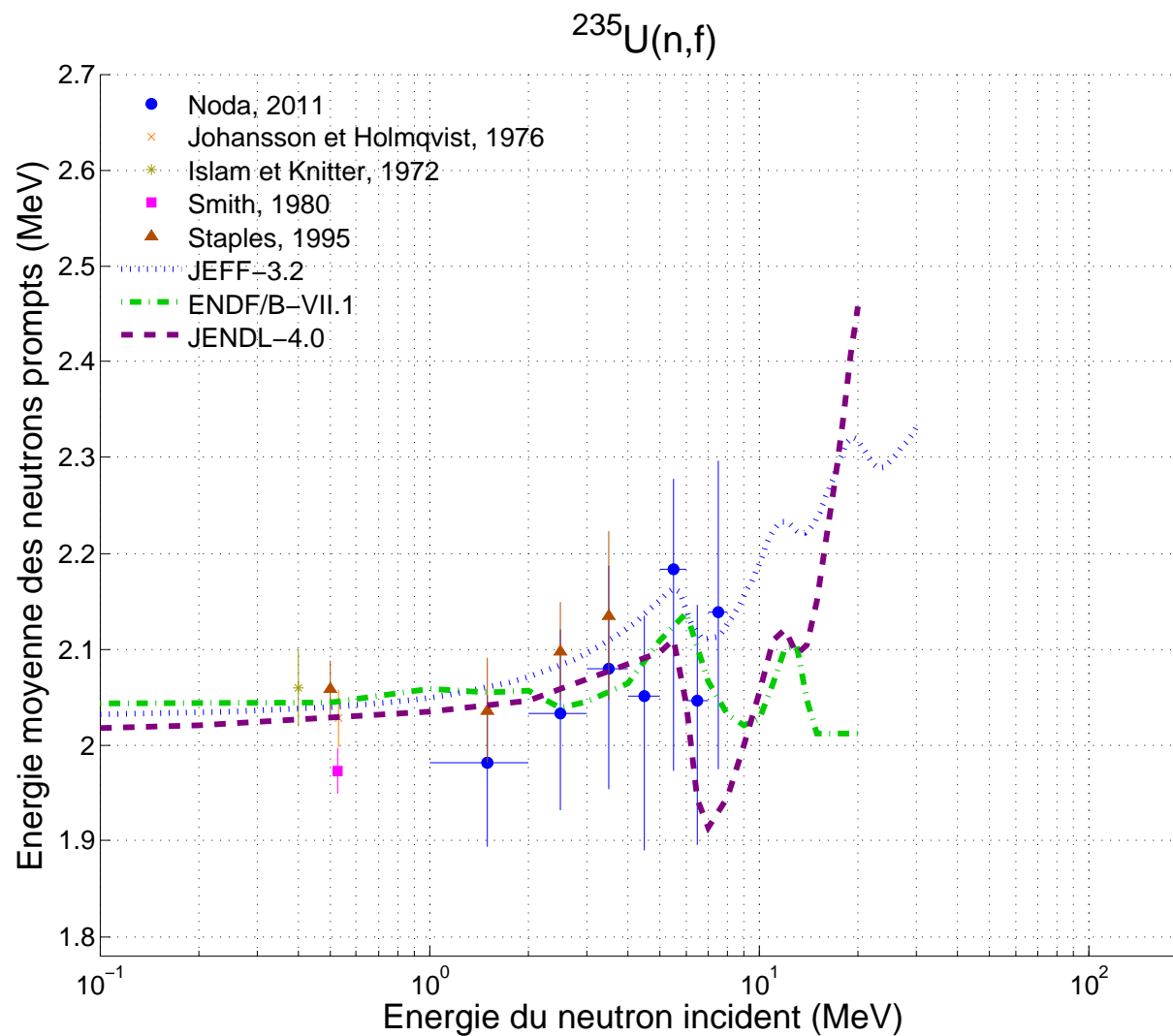


FIGURE 1.13 – Résultats de différentes mesures de l'énergie moyenne des neutrons prompts de la fission de l' ^{235}U induite par neutron rapide, en fonction de l'énergie incidente. Les énergies moyennes des spectres issus des bibliothèques internationales JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 et JENDL-4.0 sont également représentées.

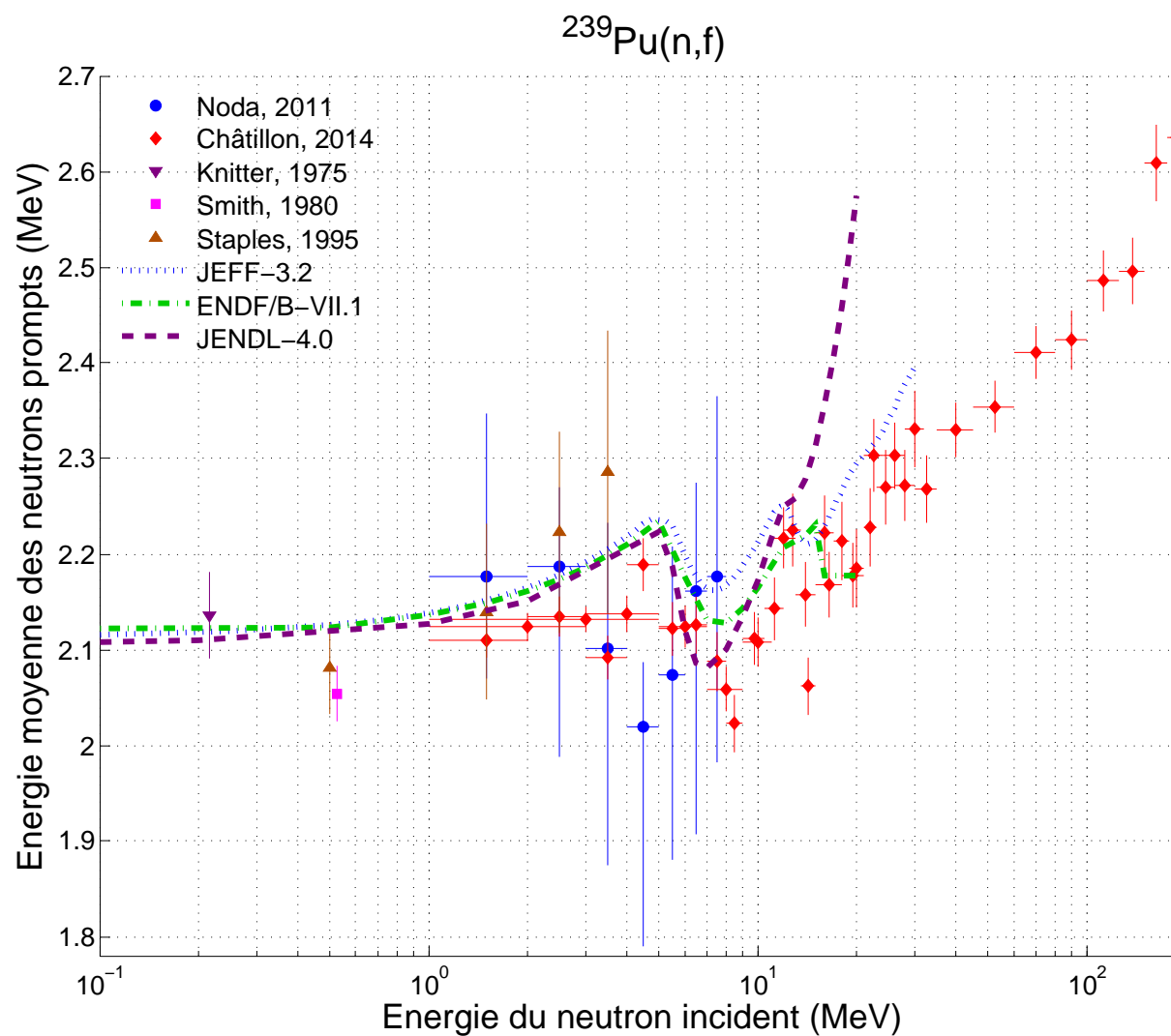


FIGURE 1.14 – Résultats de différentes mesures de l'énergie moyenne des neutrons prompts de la fission du ^{239}Pu induite par neutron rapide, en fonction de l'énergie incidente. Les énergies moyennes des spectres issus des bibliothèques internationales JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 et JENDL-4.0 sont également représentées.

Chapitre 2

La modélisation du spectre

Dans ce chapitre, on parlera de l'aspect modélisation du spectre des neutrons prompts de fission. On présentera quelques-uns des modèles qui existent ; tous ces modèles négligent l'émission des neutrons de scission ainsi que celle des neutrons émis durant la phase d'accélération des fragments. On présentera aussi le code FIFRELIN qui simule la désexcitation des fragments de fission, et on présentera les différents paramètres de modèle qui influent sur le spectre calculé par ce code.

Avant d'énumérer ces modèles, il est utile de développer la formule générale qui permet de passer du spectre des neutrons émis par un fragment dans le référentiel de ce fragment, au spectre des mêmes neutrons dans le référentiel du laboratoire. On désigne par centre de masse celui du système « fragment résiduel plus neutron », dans lequel le fragment initial est au repos (figure 2.1). On note \vec{v}^* la vitesse du neutron dans ce référentiel. On note \vec{v} sa vitesse dans le laboratoire, et \vec{v}_f la vitesse d'un nucléon qui se déplace avec la même vitesse que le fragment initial dans le référentiel du laboratoire. Le fait de considérer cette vitesse du fragment rapportée à un nucléon, nous permet de simplifier par les masses lorsque l'on considère l'énergie cinétique par la suite. Le mouvement des particules est traité de manière non-relativiste. On a donc :

$$\vec{v} = \vec{v}^* + \vec{v}_f \quad (2.1)$$

soit

$$v^2 = v^{*2} + v_f^2 + 2v^*v_f \cos \theta \quad (2.2)$$

où θ est l'angle entre la direction de propagation du fragment initial dans le laboratoire et la direction du neutron dans le centre de masse (voir figures 2.1 et 2.2). Lors de l'émission du neutron par évaporation, celle-ci est supposée isotrope dans le centre de masse. Pour une vitesse donnée dans le centre de masse v^* , on aura alors une distribution uniforme pour v^2 entre $(v^* - v_f)^2$ et $(v^* + v_f)^2$:

$$p(v^2|v^*) = \frac{1}{4v^*v_f} \times \begin{cases} 1 & \text{si } (v^* - v_f)^2 \leq v^2 \leq (v^* + v_f)^2 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.3)$$

$p(v^2|v^*)$ est la probabilité que le carré de la vitesse du neutron soit v^2 dans le laboratoire, si le carré de sa vitesse dans le centre de masse est v^{*2} . En terme d'énergie cinétique, on note $\epsilon = m_n v^{*2}/2$, $E = m_n v^2/2$ et $E_f = m_n v_f^2/2$ avec m_n la masse d'un nucléon. La probabilité $p(E|\epsilon)$ que l'énergie du neutron soit E dans le laboratoire, si son énergie est ϵ dans le centre

de masse, est donc :

$$p(E|\epsilon) = \frac{1}{4\sqrt{E_f\epsilon}} \times \begin{cases} 1 & \text{si } (\sqrt{E_f} - \sqrt{\epsilon})^2 \leq E \leq (\sqrt{E_f} + \sqrt{\epsilon})^2 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.4)$$

Le spectre du neutron $\Phi^{\text{lab}}(E)$ dans le référentiel du laboratoire est relié au spectre $\Phi^{\text{COM}}(\epsilon)$ du neutron dans le centre de masse via la relation générale :

$$\Phi^{\text{lab}}(E) = \int_0^\infty p(E|\epsilon) \cdot \Phi^{\text{COM}}(\epsilon) d\epsilon = \frac{1}{4\sqrt{E_f}} \int_{(\sqrt{E}-\sqrt{E_f})^2}^{(\sqrt{E}+\sqrt{E_f})^2} \frac{\Phi^{\text{COM}}(\epsilon)}{\sqrt{\epsilon}} d\epsilon \quad (2.5)$$

L'énergie moyenne des neutrons dans le laboratoire est reliée à l'énergie moyenne des neutrons dans le centre de masse par :

$$\langle E \rangle = E_f + \langle \epsilon \rangle \quad (2.6)$$

Ici, E_f désigne bien l'énergie cinétique du fragment **avant** l'émission du neutron, rapportée à un nucléon du fragment.

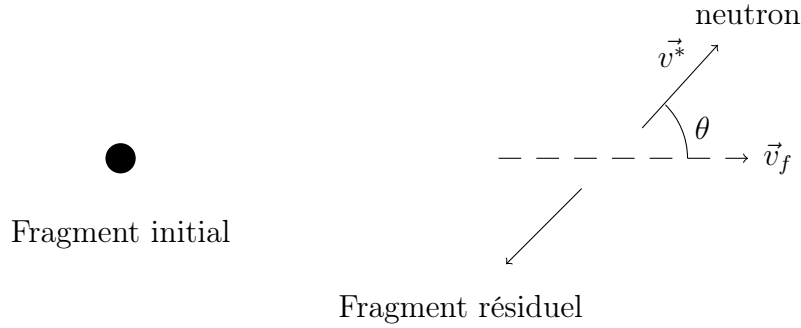


FIGURE 2.1 – Schéma de l'émission d'un neutron par un fragment, dans le centre de masse.



FIGURE 2.2 – Schéma de l'émission d'un neutron par un fragment, dans le référentiel du laboratoire.

Dans toute la suite et sauf mention contraire, l'indice « i » désigne le fragment initial, c'est à dire avant émission du neutron, et l'indice « r » le fragment résiduel, soit après émission. Dans ce chapitre, on verra les principaux modèles utilisés pour représenter le spectre

des neutrons prompts de fission dans le référentiel du laboratoire. Ces modèles peuvent se regrouper en trois catégories : les modèles historiquement utilisés comme la maxwellienne ou le modèle de Watt, qui ont pour seule vocation de donner une représentation approchée du spectre ; les modèles analytiques basés sur des considérations physiques du noyau, comme le modèle de Madland-Nix, et enfin le modèle de désexcitation des fragments, basé sur le Monte-Carlo, du code FIFRELIN.

2.1 Etat de l’art sur les modèles analytiques

2.1.1 Les modèles historiques : maxwellienne et modèle de Watt

Le modèle de Watt et le modèle maxwellien sont purement empiriques, et n’ont pas de fondements théoriques. Ils permettent une description raisonnable du spectre dans une première approximation.

Le modèle maxwellien

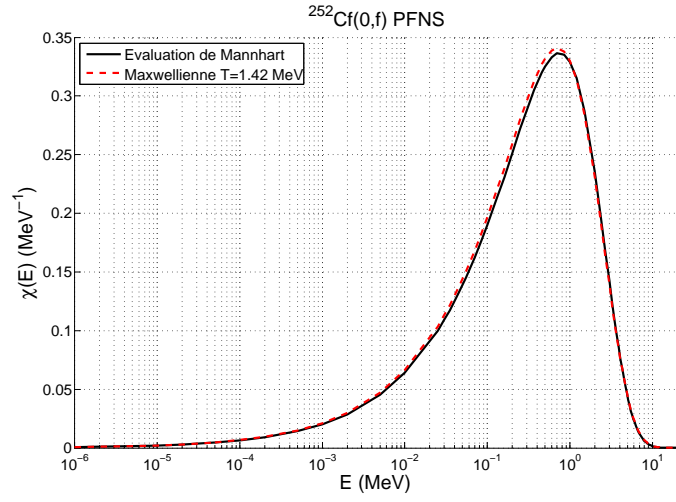
La représentation la plus simple et la plus ancienne pour décrire le PFNS est une maxwellienne :

$$\mathcal{M}(E, T) = \frac{2}{\sqrt{\pi} T^3} \sqrt{E} e^{-E/T} \quad (2.7)$$

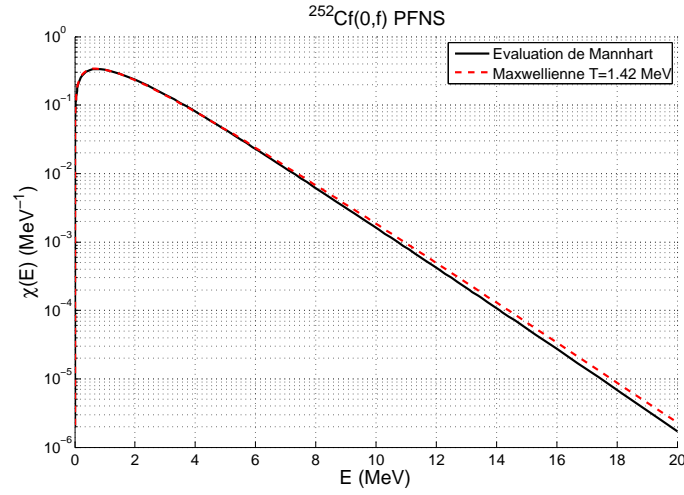
Le seul paramètre, la température T , ayant la dimension d’une énergie, est à déterminer pour chaque système fissionnant et chaque énergie du neutron incident. L’énergie moyenne du spectre maxwellien est :

$$\langle E \rangle = \frac{3}{2} T \quad (2.8)$$

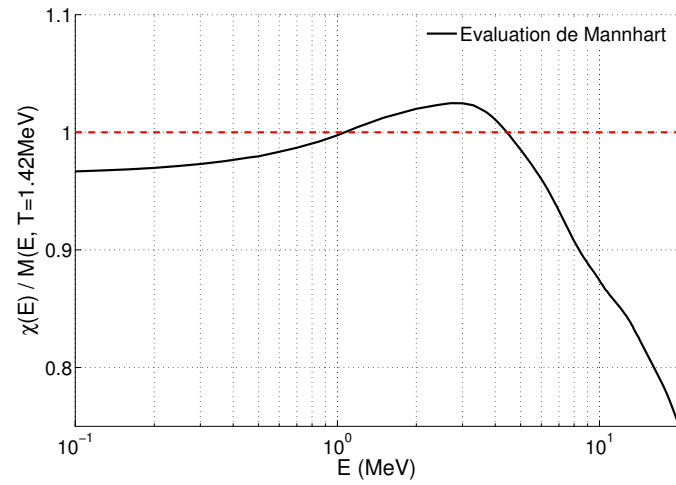
Cette représentation, basée sur l’assimilation des neutrons prompts à un gaz de neutrons, n’a pas de réel fondement physique ; cependant, elle est très utilisée en raison de sa simplicité. Elle n’a pas de pouvoir prédictif, et la valeur de T repose uniquement sur la connaissance expérimentale disponible pour un système fissionnant donné. Pour la fission spontanée du ^{252}Cf , qui est un standard international, la valeur de T généralement utilisée est $T = 1.42$ MeV. Elle provient de comparaisons avec les mesures de spectre et d’énergie moyenne des neutrons prompts [11]. Les figures 2.3a et 2.3b montrent l’évaluation de Mannhart [49] pour le spectre de la fission spontanée du ^{252}Cf , ainsi que la maxwellienne $T = 1.42$ MeV, avec deux échelles semi-logarithmiques. L’échelle logarithmique en abscisse permet d’avoir une bonne visibilité du spectre à basse énergie, tandis que l’échelle logarithmique en ordonnées permet de mieux voir le spectre à haute énergie. On observe visuellement un relativement bon accord de la maxwellienne avec les données de Mannhart (sauf à haute énergie). La figure 2.3c montre le rapport de l’évaluation de Mannhart à la maxwellienne. On peut ainsi noter que dans le domaine énergétique où les neutrons émis sont les plus nombreux, c’est-à-dire entre 1 et 4 MeV, le fait de considérer un spectre maxwellien revient à sous-estimer le nombre de neutrons émis. Au-delà de 4 MeV, l’écart entre la maxwellienne et l’évaluation de Mannhart devient très important (25% à 20 MeV). Comme on l’a vu au chapitre 1, l’évaluation de Mannhart repose sur des mesures de spectre et a fait l’objet de validation par mesures d’irradiation. Le PFNS est très couramment représenté comme un rapport à une maxwellienne, en raison de la facilité que cela donne pour observer les différences entre deux spectres sur tout le domaine d’énergie.



(a)



(b)



(c)

FIGURE 2.3 – (a) et (b) : PFNS du ^{252}Cf (fission spontanée) : comparaison entre l'évaluation de Mannhart [49] et la maxwellienne $T = 1.42$ MeV. (b) Rapport de l'évaluation de Mannhart à la maxwellienne.

Modèle de Watt

Watt propose en 1952 une amélioration [78]. Il considère l'émission des neutrons par un fragment de fission moyen après sa phase d'accélération, et lui attribue un spectre maxwellien de paramètre T_W dans le référentiel du centre de masse du fragment. Le spectre dans le référentiel du laboratoire est ensuite déduit de l'énergie cinétique moyenne des fragments E_f rapportée à un nucléon via la relation 2.5. Ce qui donne l'expression du spectre de Watt pour une température T_W et une énergie cinétique moyenne des fragments E_f rapportée à un nucléon :

$$\mathcal{W}(E, T_W, E_f) = \frac{e^{-E_f/T_W}}{\sqrt{\pi E_f T_W}} \cdot \sinh\left(\frac{2\sqrt{E E_f}}{T_W}\right) \cdot e^{-E/T_W} \quad (2.9)$$

On le trouve parfois aussi sous la forme suivante, avec $a = T_W$ et $b = 4E_f/T_W^2$:

$$\mathcal{W}(E, a, b) = \frac{2 e^{-ab/4}}{\sqrt{\pi b a^3}} \cdot \sinh\left(\sqrt{bE}\right) \cdot e^{-E/a} \quad (2.10)$$

D'après la relation 2.6, l'énergie moyenne du spectre de Watt est :

$$\langle E \rangle = E_f + \frac{3}{2}T_W \quad (2.11)$$

Cette représentation permet plus de souplesse que la maxwellienne pour reproduire les mesures, cependant les valeurs de ses paramètres T_W et E_f reposent tout autant sur des ajustements, le spectre de Watt n'offre donc pas plus de prédictivité. La figure 2.4 montre la sensibilité du spectre de Watt à chacun des paramètres T_W et E_f . On observe qu'à partir de quelques MeV, le spectre devient beaucoup plus sensible à la température T_W qu'au paramètre d'énergie cinétique des fragments. Le fait de considérer la même énergie cinétique pour les deux fragments a donc moins d'impact que le fait de considérer qu'ils ont le même spectre dans le centre de masse. La figure 2.5 présente un spectre de Watt ajusté pour reproduire le spectre de la fission spontanée du ^{252}Cf [49]. L'énergie moyenne de ce spectre de Watt est 2.12 MeV, c'est-à-dire proche de l'énergie moyenne de la maxwellienne $T = 1.42$ MeV qui est de 2.13 MeV. On voit que le spectre de Watt est plus à même que la maxwellienne de reproduire l'évaluation de Mannhart.

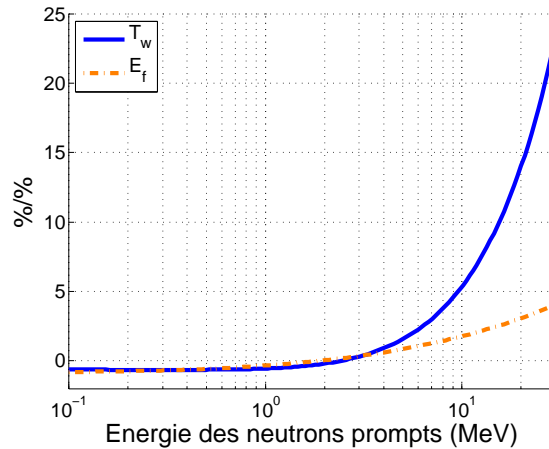


FIGURE 2.4 – Sensibilité, en %/%, d'un spectre de Watt à la température T_W et au paramètre d'énergie cinétique du fragment E_f , pour $T_W = 0.89$ MeV et $E_f = 0.78$ MeV/nucléon.

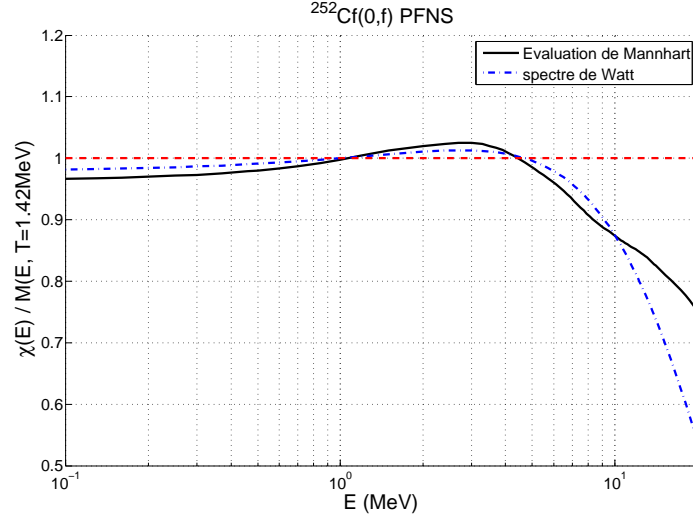


FIGURE 2.5 – Evaluation de Mannhart du spectre de la fission spontanée du ^{252}Cf , ainsi qu’un spectre de Watt ajusté [49], présentés comme un rapport à une maxwellienne $T = 1.42$ MeV (donc d’énergie moyenne 2.13 MeV). L’énergie moyenne du spectre de Watt est de 2.12 MeV.

2.1.2 Modèle de Madland-Nix ou de Los Alamos

Spectre de Weisskopf et considérations de Terrell

Weisskopf s’appuie en 1937 [79] sur un modèle statistique du noyau et notamment le modèle du gaz de Fermi, pour décrire l’émission des particules promptes par les fragments de fission après accélération. Son modèle sera détaillé plus loin dans ce chapitre. Il arrive à l’expression suivante pour la distribution en énergie cinétique ϵ du neutron émis, dans le référentiel du fragment émetteur :

$$\phi(\epsilon, T) = k(T) \cdot \sigma_c(\epsilon) \cdot \epsilon \cdot e^{-\epsilon/T} \quad (2.12)$$

avec la constante de normalisation :

$$k(T) = \left(\int_0^\infty \sigma_c(\epsilon) \cdot \epsilon \cdot e^{-\epsilon/T} d\epsilon \right)^{-1} \quad (2.13)$$

$\sigma_c(\epsilon)$ est la section efficace inverse de formation du noyau composé. Si on la considère constante sur tout le domaine en énergie, $\sigma_c(\epsilon) = \sigma_c$, alors $k(T) = 1/(\sigma_c \cdot T^2)$, et on a dans ce cas :

$$\phi(\epsilon, T) = \frac{\epsilon}{T^2} \cdot e^{-\epsilon/T} \quad (2.14)$$

La section efficace inverse n’intervient plus dans le spectre d’émission du neutron. T est la température (en MeV) du fragment après émission du neutron. Dans le modèle du gaz de Fermi, la température du fragment est liée à son énergie d’excitation moyenne $\langle E^* \rangle$ par la relation :

$$\langle E^* \rangle = aT^2 \quad (2.15)$$

où a , exprimé en MeV^{-1} , est appelé « paramètre de densité de niveaux » et est relié à la densité de niveaux d'énergie du fragment $\rho(E^*)$ à l'énergie d'excitation E^* via :

$$\rho(E^*) = \rho(0) e^{2\sqrt{aE^*}} \quad (2.16)$$

Considérons que l'énergie d'excitation du fragment initial soit E_i^* . Après émission d'un neutron d'énergie cinétique ϵ dans le centre de masse, le fragment résiduel aura une énergie cinétique de $(m_n/M_r) \cdot \epsilon$ dans le centre de masse, où M_r est la masse du fragment résiduel. En négligeant l'énergie de recul du fragment résiduel, son énergie d'excitation est :

$$E_r^* = E_i^* - S_n - \epsilon \quad (2.17)$$

où S_n est l'énergie de séparation du neutron du fragment initial. L'énergie d'excitation maximale pour le fragment résiduel est $E_{r,\max}^* = E_i^* - S_n$ (neutron émis sans vitesse). Pour connaître la distribution de l'énergie d'excitation du fragment résiduel, il faut donc connaître la distribution de son énergie d'excitation initiale. Terrell montre [72], à partir d'informations sur la distribution du nombre de neutrons émis par chaque fragment, que la distribution de E_i^* peut être approximée par une loi gaussienne. De là, il déduit la forme de la distribution de E_r^* , en sommant les distributions après chaque émission de neutron — chacune ayant pour effet un shift dans la distribution de l'énergie d'excitation de l'ordre de $S_n - \epsilon$ [73]. De la relation 2.15, il déduit une distribution en température pour le fragment résiduel. Terrell remarque aussi que cette distribution peut être approximée par une loi linéaire :

$$p(T) = \begin{cases} 2T/T_m^2 & \text{si } T \leq T_m \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.18)$$

où T_m est reliée à l'énergie d'excitation maximale pour le fragment résiduel. Terrell montre enfin qu'on peut raisonnablement considérer que T_m est reliée à l'énergie d'excitation du fragment initial, soit

$$T_m = \sqrt{\frac{\langle E_i^* \rangle}{a_i}} \quad (2.19)$$

où a_i est le paramètre de densité de niveaux du fragment initial. Ici, on a considéré un fragment émetteur dans un état d'excitation défini. En pratique, on connaît l'énergie d'excitation *totale* du noyau composé formé après capture d'un neutron, qu'on sait être $E_A = E_n + S_n^A$ (en négligeant le recul du noyau), où E_n est l'énergie du neutron qui provoque la fission, et S_n^A son énergie de liaison dans le noyau composé. D'autre part, la conservation de l'énergie implique qu'après la phase d'accélération des fragments :

$$E_A = E_i^{*,L} + E_i^{*,H} - Q + E_f^{\text{tot}} \quad (2.20)$$

où Q est la différence entre la somme des masses des fragments et la masse du noyau composé, c'est l'énergie libérée par la fission, et E_f^{tot} est l'énergie cinétique totale des fragments (absolue et non pas rapportée à un nucléon). Pour une fragmentation donnée, en connaissant Q et E_f^{tot} , ainsi que l'énergie d'excitation du noyau composé, on peut déduire $E_i^{*,L} + E_i^{*,H}$. Mais on ne connaît pas $E_i^{*,L}$ et $E_i^{*,H}$ séparément. Chaque modèle a donc ses hypothèses sur le sujet comme on le verra.

Le modèle proposé par Madland et Nix en 1981 [47], puis raffiné par eux-mêmes et par d'autres par la suite, est appelé dans sa forme actuelle « modèle de Los Alamos ». C'est le modèle le plus utilisé dans la communauté internationale pour décrire les spectres de neutrons prompts de fission, notamment dans les évaluations. Il reprend le spectre d'évaporation de Weisskopf $\phi(\epsilon, T)$ dans le centre de masse ainsi que la distribution en température proposée par Terrell (équation 2.18). Ce qui donne pour le spectre des neutrons d'évaporation dans le centre de masse $\Phi(\epsilon)$:

$$\Phi(\epsilon) = \int_0^\infty \phi(\epsilon, T) \cdot p(T) dT \quad (2.21)$$

Le spectre d'un fragment moyen $\chi^{L,H}(E, T_m, E_f^{L,H})$, léger ou lourd, dans le référentiel du laboratoire, est obtenu via la relation 2.5. Ce qui nous donne l'expression analytique suivante, dans le cas d'une section efficace inverse constante :

$$\chi(E, T_m, E_f) = \frac{1}{3\sqrt{E_f T_m}} \left[u_2^{3/2} E_1(u_2) - u_1^{3/2} E_1(u_1) + \gamma\left(\frac{3}{2}, u_2\right) - \gamma\left(\frac{3}{2}, u_1\right) \right] \quad (2.22)$$

où :

$$\begin{cases} u_1 = (\sqrt{E} - \sqrt{E_f})^2 / T_m, \\ u_2 = (\sqrt{E} + \sqrt{E_f})^2 / T_m \end{cases} \quad (2.23)$$

E_f correspond à E_f^L ou à E_f^H suivant qu'on considère le fragment léger ou lourd. $\gamma(a, x)$ est la fonction gamma incomplète inférieure :

$$\gamma(a, x) = \int_0^x u^{a-1} e^{-u} du \quad (2.24)$$

et $E_1(x)$ est l'intégrale exponentielle :

$$E_1(x) = \int_x^\infty \frac{e^{-u}}{u} du \quad (2.25)$$

Chaque fragment, lourd et léger, a son propre spectre, et émet un nombre différent de neutrons. Le spectre total des neutrons d'évaporation est pondéré par le rapport des multiplicités moyennes du lourd et du léger :

$$\chi(E, T_m, E_f^L, E_f^H) = \frac{r}{1+r} \chi(E, T_m, E_f^L) + \frac{1}{1+r} \chi(E, T_m, E_f^H) \quad (2.26)$$

où $r = \bar{\nu}_L / \bar{\nu}_H$ est le rapport des multiplicités du léger et du lourd. Dans la fission thermique de ^{235}U par exemple, on observe expérimentalement que le fragment léger émet en moyenne 1.41 neutrons tandis que le lourd en émet en moyenne 1.01, ce qui donne $r \approx 1.4$. Ce rapport n'est connu expérimentalement que pour un nombre très limité de systèmes fissionnants. L'énergie moyenne du spectre de Madland-Nix dans le centre de masse est égale à $4T_m/3$. L'énergie moyenne dans le référentiel du laboratoire est donc :

$$\langle E \rangle = \frac{r}{1+r} E_f^L + \frac{1}{1+r} E_f^H + \frac{4}{3} T_m \quad (2.27)$$

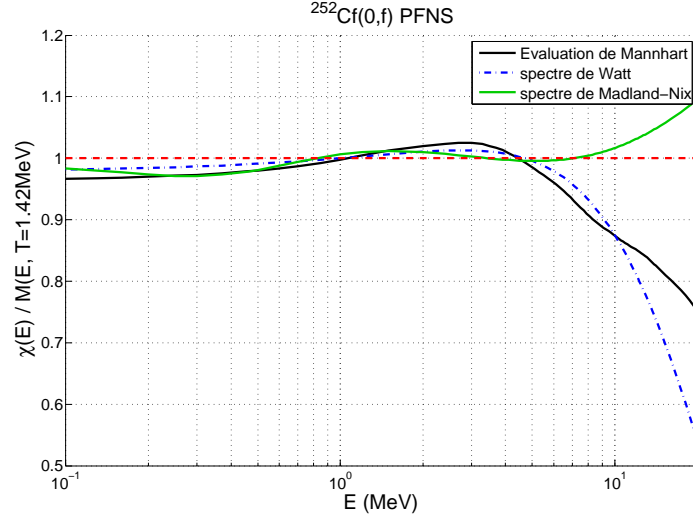


FIGURE 2.6 – Evaluation de Mannhart du spectre de la fission spontanée du ^{252}Cf , ainsi qu’un spectre de Madland-Nix d’énergie moyenne 2.135 MeV, présentés comme un rapport à une maxwellienne $T = 1.42$ MeV (donc d’énergie moyenne 2.13 MeV). Le spectre de Watt d’énergie moyenne 2.12 MeV présenté sur la figure 2.5 est rappelé ici.

La figure 2.6 présente un spectre de Madland-Nix d’énergie moyenne 2.135 MeV, présenté comme un rapport à la maxwellienne d’énergie moyenne 2.13 MeV. Le spectre de Watt présenté plus haut dans ce chapitre est rappelé sur la figure pour comparaison. On voit que le spectre de Madland-Nix est très éloigné de l’évaluation de Mannhart en particulier à partir de quelques MeV. Cependant, contrairement au spectre de Watt représenté, ses paramètres n’ont pas fait l’objet d’un ajustement. Choisir les paramètres de façon à obtenir une énergie moyenne réaliste ne suffit évidemment pas à avoir une bonne représentation du spectre. Le paragraphe suivant présente les prescriptions de la référence [47] pour le choix des paramètres.

Estimation des températures et énergies cinétiques par nucléon

Pour estimer T_m via l’équation 2.19, il faut connaître la répartition de l’énergie d’excitation entre les deux fragments. Madland et Nix supposent un équilibre thermodynamique lors de la fission : $T_{\text{CN}} = T_L = T_H$ où CN représente le noyau composé. Cette hypothèse très forte revient à négliger l’énergie de déformation des fragments à la scission. On a donc, en utilisant l’équation 2.15 :

$$\frac{\langle E^{*,\text{CN}} \rangle}{a_{\text{CN}}} = \frac{\langle E^{*,\text{L}} \rangle}{a_L} = \frac{\langle E^{*,\text{H}} \rangle}{a_H} \quad (2.28)$$

L’indice « i » pour les fragments est omis. Madland et Nix approximent T_m par

$$T_m = \sqrt{\frac{\langle E^{*,\text{tot}} \rangle}{a_{\text{CN}}}} \quad (2.29)$$

On connaît l’énergie d’excitation moyenne totale $\langle E^{*,\text{tot}} \rangle = \langle E^{*,\text{L}} \rangle + \langle E^{*,\text{H}} \rangle$:

$$\langle E^{*,\text{tot}} \rangle = \langle Q \rangle - \langle E_f^{\text{tot}} \rangle + E_n + S_n^A \quad (2.30)$$

Pour la fission spontanée, S_n^A et E_n sont nuls. Madland et Nix s'appuient sur des mesures pour connaître $\langle Q \rangle$, $\langle E_f^{\text{tot}} \rangle$ et S_n^A pour les noyaux fissionnants d'intérêt. Pour ce qui est du paramètre de densité de niveaux, ils considèrent une paramétrisation simple de a en fonction du nombre de masse A du noyau composé :

$$a = \frac{A}{K} \quad (2.31)$$

en prenant $K = 11$ MeV. La conservation de la quantité de mouvement nous donne E_f^L et E_f^H :

$$E_f^{L,H} = \frac{A_{H,L}}{A_{L,H}} \frac{\langle E_f^{\text{tot}} \rangle}{A} \quad (2.32)$$

Hypothèses et prédictivité du modèle

Le modèle de Madland-Nix, pour décrire le spectre, fait donc les hypothèses suivantes (uniquement dans la forme que l'on vient de voir et qui a été raffinée) :

1. Tous les neutrons prompts sont émis par les fragments après accélération ;
2. Seule la fission binaire est considérée : un fragment léger et un fragment lourd, de nombre de masse A_L et A_H respectivement ;
3. Seule la fission de première chance est considérée ;
4. L'émission des neutrons est isotrope dans le centre de masse ;
5. On considère uniquement la fragmentation la plus probable ;
6. On considère que tous les neutrons émis par un fragment ont le même spectre, quel que soit le nombre de neutrons émis avant ;
7. Les deux fragments ont la même température.

Le modèle comme présenté plus haut peut être raffiné à plusieurs degrés. Notamment, on peut considérer la dépendance en énergie de la section efficace inverse dans le spectre de Weisskopf, plutôt que de la considérer constante comme dans l'équation 2.14. Cette dépendance en énergie a pour effet d'adoucir le spectre. Cette question sera discutée dans le chapitre 2.3. Le modèle dans sa forme initiale de 1981 prend également en compte les fissions d'ordres supérieurs, en considérant la compétition entre la fission et l'émission de neutron. Une amélioration importante du modèle est le modèle « *Point-by-Point* » [47, 75], qui considère une somme sur les fragmentations possibles, pondérées par leur distribution. D'autres améliorations ont été apportées, notamment l'inclusion d'une contribution de neutrons de scission, la prise en compte d'une distribution raffinée en température et l'introduction d'un paramètre d'anisotropie dans le centre de masse (alternative à l'hypothèse 4) [77]. La référence [56] propose l'introduction d'un rapport constant non-égal à 1 entre les températures des fragments.

Selon les prescriptions du paragraphe précédent, on est donc capable de calculer le spectre d'un système fissionnant, à condition de connaître les valeurs de $\langle E_f^{\text{tot}} \rangle$, de $\langle Q \rangle$, de E_n et de S_n^A . En pratique, ces prédictions sur les paramètres T_m , E_f^L et E_f^H ne permettent pas de reproduire les données. Cependant, on peut trouver des valeurs de T_m , E_f^L et E_f^H pour lesquelles on reproduit mieux les mesures qu'avec une maxwellienne, et légèrement mieux qu'avec un spectre de Watt, comme on le verra dans le chapitre 3. Le modèle dans sa forme

actuelle est souvent appelé modèle de Los Alamos. Il offre une base phénoménologique qui s'appuie sur des considérations physiques du noyau, ce qui lui confère une certaine légitimité, bien que dans les faits il soit plus souvent utilisé dans le cadre d'un ajustement des paramètres libres pour reproduire les données.

2.2 Modélisation du spectre via le code FIFRELIN

Ces dernières années ont vu l'apparition de plusieurs codes se basant sur la simulation Monte-Carlo pour décrire l'émission des particules promptes lors de la fission de façon plus réaliste. Ces codes diffèrent par leur approche et par leurs modèles. Nous parlerons ici plus spécialement du code FIFRELIN [45, 62, 61], développé au CEA/LEPh. Le Monte-Carlo permet de s'affranchir de plusieurs hypothèses nécessaires dans les modèles « analytiques ». Le code FIFRELIN a fait le choix d'une simulation Monte-Carlo à deux niveaux :

1. Un tirage Monte-Carlo pour le choix des propriétés des deux fragments de fission : nombres de masse, charges, énergie d'excitation, spin-parité et énergie cinétique. Ces propriétés sont échantillonnées suivant les distributions de probabilité qui leur sont associées. Ceci nous permet de nous affranchir de l'hypothèse 5 du modèle de Madland-Nix.
2. La simulation Monte-Carlo de la désexcitation des fragments de fission. On s'affranchit donc de l'hypothèse 6 du modèle de Madland-Nix.

Si la première phase est spécifique à la fission, la désexcitation en revanche est celle d'un noyau excité à l'énergie $E_{L,H}^*$ par un processus qui pourrait être autre que la fission. Le choix de la fragmentation et la cascade de désexcitation associée sont répétés un grand nombre de fois. Dans la suite on abordera séparément chacune de ces deux parties.

2.2.1 Echantillonnage des fragments de fission

D'après la connaissance expérimentale que l'on a des rendements en masse des fragments pré-neutrons $Y(A)$, c'est-à-dire avant émission des neutrons prompts (figure 2.7), on échantillonne la masse d'un des fragments. La distribution en charge Z est une gaussienne corrigée des effets de parité neutron et proton, et la charge la plus probable est estimée grâce à l'hypothèse UCD (pour *Unchanged Charge Density*), qui considère que le rapport du nombre de protons sur le nombre de nucléons doit être le même pour le noyau composé et pour chacun des fragments. On déduit la masse et la charge de l'autre fragment via la conservation des charges électrique et baryonique : $Z_L + Z_H = Z_{CN}$ et $A_L + A_H = A_{CN}$. Le moment angulaire total des fragments est également échantillonné, suivant la loi de probabilité exposée dans la référence [45].

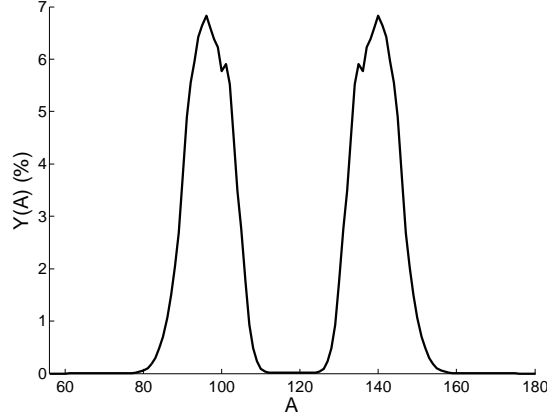


FIGURE 2.7 – Données de Hambsch *et al.* (1989) pour les rendements en masse pré-neutrons pour $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ [27]

L'émission des particules promptes par les fragments est conditionnée par la quantité d'énergie d'excitation dont ils disposent. Comme on l'a vu, il faut donc faire des hypothèses sur comment se répartit l'énergie d'excitation totale. A la scission, l'énergie d'excitation de chacun des fragments est présente pour la plus grande partie sous forme d'énergie de déformation. Seule la partie restante est une énergie d'excitation « intrinsèque », c'est à dire disponible pour le réarrangement des nucléons sur les différents niveaux. Durant leur phase d'accélération, les fragments reprennent la déformation de leur état fondamental (phase dite de relaxation). Leur énergie d'excitation est alors composée d'énergie d'excitation intrinsèque, ainsi que d'une énergie rotationnelle (excitation collective). Après l'accélération des fragments, on a donc :

$$E_{\text{L,H}}^* = E_{\text{L,H}}^{*,\text{int}} + E_{\text{L,H}}^{*,\text{rot}} \quad (2.33)$$

Le noyau est ici assimilé à une goutte rotative liquide, et son énergie de rotation dépend de son moment angulaire total, et de son moment d'inertie. Ce dernier peut être estimé en considérant deux modèles extrêmes pour la rigidité du noyau, comme expliqué dans la référence [45]. Seule l'énergie d'excitation intrinsèque est reliée à la température du gaz de Fermi. Comme on connaît $E_{\text{L}}^* + E_{\text{H}}^*$ via l'équation 2.30, on connaît également $E_{\text{L}}^{*,\text{int}} + E_{\text{H}}^{*,\text{int}}$, et on a :

$$E_{\text{L,H}}^{*,\text{int}} = a_{\text{L,H}} \cdot T_{\text{L,H}}^2 \quad (2.34)$$

Dans FIFRELIN, on définit le rapport des températures, en fonction de la masse A_{L} du fragment léger (ou de celle $A_{\text{H}} = A_{\text{CN}} - A_{\text{L}}$ du fragment lourd) :

$$R_T(A_{\text{L}}) = \frac{T_{\text{L}}}{T_{\text{H}}} \quad (2.35)$$

La forme de $R_T(A_{\text{L}})$ est basée sur les considérations suivantes :

- Dans le cas de la fission symétrique, $R_T(A_{\text{L}} = A_{\text{H}}) = 1$.
- Dans le cas où l'un des fragments est très peu déformé, comme dans le cas des noyaux doublement magiques, son énergie d'excitation et sa température sont minimales, la plus grande partie revient donc à l'autre fragment. S'il s'agit du fragment léger, R_T est minimal et vaut R_T^{min} . C'est par exemple le cas lorsque le fragment léger est le ^{78}Ni , car

il possède 28 protons et 50 neutrons, les protons et les neutrons sont donc en couches sphériques fermées. S'il s'agit du fragment lourd, R_T est maximal et vaut R_T^{\max} , comme dans le cas où le fragment lourd est le ^{132}Sn (50 protons et 82 neutrons).

Sur ces deux considérations repose la loi en R_T représentée sur la figure 2.8. Ceci s'oppose à l'hypothèse 7 du modèle de Madland-Nix. Cette loi plutôt qu'un rapport $R_T(A_L) = 1$ permet de reproduire la forme en dents de scie (*sawtooth*) de la multiplicité en fonction de la masse du fragment primaire $\nu(A)$. Cela permet aussi de se passer de l'hypothèse de températures égales pour les fragments léger et lourd, et ainsi de prendre en compte l'énergie de déformation disponible à la scission.

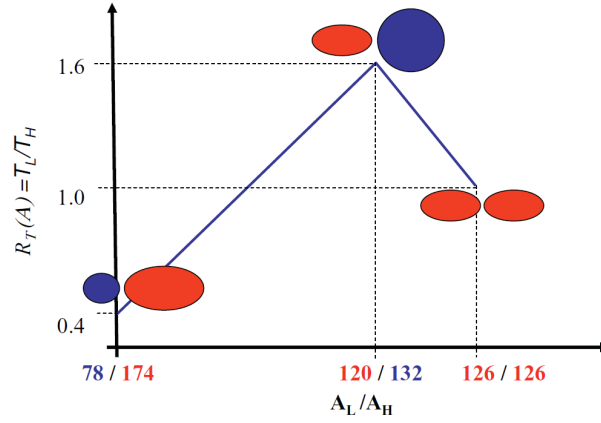


FIGURE 2.8 – Répartition de l'énergie d'excitation entre les fragments : loi en température dans FIFRELIN, dans le cas de la fission spontanée du ^{252}Cf , schéma de la référence [45] (voir texte pour les explications). Ici, $R_T^{\min} = 0.4$ et $R_T^{\max} = 1.6$.

2.2.2 La cascade de désexcitation des fragments

Intérêt du Monte-Carlo

Le modèle de Madland-Nix considère un « processus moyen » d'émission de neutrons par un fragment. Or l'émission des particules lors de la désexcitation des fragments est un processus en cascade. En effet, après l'émission d'un neutron, le fragment résiduel diffère du fragment initial qui a émis le neutron : il n'a ni le même nombre de masse, ni la même énergie d'excitation, ni le même moment angulaire total. L'émission du neutron suivant ne peut donc pas être décrite de la même manière. Notons $\phi_1(E_1)$ le spectre du premier neutron émis. L'énergie d'excitation du nouveau fragment dépend de E_1 comme on l'a vu. Le spectre $\phi_2(E_2, E_1)$ du deuxième neutron émis dépend alors également de E_1 . Le spectre du deuxième neutron intégré sur toutes les énergies possibles du premier neutron, s'écrit donc :

$$\Phi_2(E_2) = \int_0^{\infty} \phi_2(E_2, E_1) \cdot \phi_1(E_1) dE_1 \quad (2.36)$$

De même, le spectre $\phi_n(E_n, E_{n-1})$ du n -ième neutron émis dépendra de l'énergie E_{n-1} du précédent neutron émis. Le spectre $\Phi_n(E_n)$ du n -ième neutron intégré sur toutes les énergies

possibles pour chacun des neutrons précédents s'écrira donc :

$$\Phi_n(E_n) = \int_0^\infty \int_0^\infty \cdots \int_0^\infty \phi_n(E_n, E_{n-1}) \cdot \phi_{n-1}(E_{n-1}, E_{n-2}) \cdots \phi_2(E_2, E_1) \cdot \phi_1(E_1) dE_1 dE_2 \cdots dE_{n-1} \quad (2.37)$$

Il faut noter que les spectres dans l'intégrale de l'équation 2.37 doivent être exprimés dans le centre de masse du fragment qui émet le n -ième neutron. Comme on ne sait pas *a priori* combien de neutrons seront émis, car la multiplicité dépend de l'énergie de chacun des neutrons émis, il est difficile de se servir de façon fiable de l'équation 2.37 pour connaître le spectre.

Un autre moyen de tenir compte de la cascade d'évaporation est le tirage aléatoire d'une énergie pour chaque neutron selon son spectre, et le calcul du spectre du neutron suivant uniquement en fonction de l'énergie tirée. Si $\phi_1(E_1)$ est le spectre du premier neutron émis, alors on échantillonne une valeur de E_1 et on en déduit $\phi_{2|E_1}(E_2)$, et ainsi de suite. Au fur et à mesure de la cascade, le fragment résiduel finit par atteindre la limite énergétique qui permet l'émission des neutrons. A ce moment commence l'émission des gammas. Le calcul n'est représentatif que si on répète la cascade un grand nombre de fois. Dans le cas de FIFRELIN, on aura deux cascades par fragmentation (une pour chaque fragment), on simulera donc un grand nombre de fragmentations suivies chacune d'une cascade de désexcitation. FIFRELIN dispose de plusieurs modèles de désexcitation du fragment, dont le modèle de Weisskopf.

L'autre intérêt du Monte-Carlo par rapport à une méthode analytique est que cela donne accès aux autres observables de fission de façon corrélée, comme on le verra plus loin.

Calcul des probabilités d'émission : Weisskopf ou Hauser-Feshbach

Comme on l'a dit, le calcul FIFRELIN se fait en deux phases distinctes : la première concerne le tirage des caractéristiques des fragments, et la deuxième concerne la désexcitation de chacun des deux fragments séparément. Pour cette deuxième phase, plusieurs modèles sont disponibles dans FIFRELIN. On les regroupera en deux catégories :

1. **Le mode découplé** : les neutrons sont émis selon un spectre de Weisskopf comme présenté plus haut. Lorsque les fragments sortent du domaine en énergie d'excitation et en moment angulaire où l'émission neutron est permise (figure 2.9), on considère l'émission neutron terminée et on peut alors modéliser l'émission des gammas seuls. Une compétition existe implicitement entre l'émission neutron et gamma, dans le sens où l'émission gamma sera favorisée à haut spin pour une énergie d'excitation donnée. L'émission gamma est effectuée à partir d'un modèle similaire à celui développé dans DICEBOX [7] pour les captures radiatives. A basse énergie d'excitation, on utilise le schéma de niveaux expérimental, et les intensités gamma entre les niveaux, qui proviennent de la base RIPL-3 [12]. La figure 2.10 donne une représentation schématique de la décroissance gamma à basse énergie. A plus haute énergie, lorsque ces informations ne sont plus connues, on utilise des modèles de densité de niveaux et des fonctions de force gamma, pour estimer les coefficients de transmission gamma.

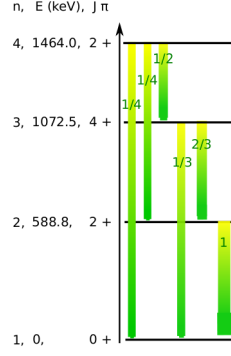


FIGURE 2.10 – Schéma d’une cascade de décroissance gamma pour les quatre premiers niveaux du ^{138}Xe (schéma de la référence [61])

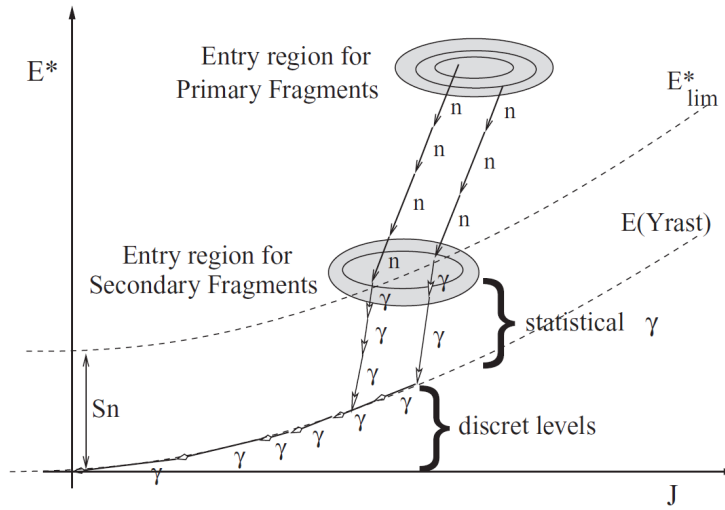


FIGURE 2.9 – Schéma de l’évaporation des neutrons et des gammas en mode découplé, dans le plan (E^*, J) (schéma de la référence [45])

2. **Le mode couplé** : la probabilité d’émettre un neutron ou un gamma est prise en compte dès le début de l’évaporation, par le biais des coefficients de transmission (méthode de type Hauser-Feshbach développée dans la référence [61]). Les coefficients de transmission gamma sont évalués comme précédemment. Les coefficients de transmission neutron sont tabulés dans une bibliothèque interne à FIFRELIN, sur une grille en énergie et en moment angulaire orbital donnée. Cette tabulation est établie pour une paramétrisation donnée du potentiel de modèle optique.

2.2.3 Accès aux autres observables de fission et corrélation entre ces observables

Que l’évaporation soit simulée en mode Weisskopf ou Hauser-Feshbach, le calcul nous donne accès à toutes les observables de fission. L’implémentation d’un algorithme de type Hauser-Feshbach dans FIFRELIN a permis de prendre en compte de façon plus rigoureuse la compétition neutron-gamma dans la zone de transition qui intervient à la fin de l’émission

neutron. En revanche, il a montré qu’une quantité négligeable de gammas pouvaient être émis avant le dernier neutron.

A la fin de la simulation, on a accès à un certain nombre de grandeurs et de distributions reliées à la fission : distribution en masse des fragments après le dernier neutron émis (« rendements post-neutrons »), distribution en énergie cinétique des fragments post-neutrons, spectre et multiplicité des neutrons et des gammas, par fragment, par nombre de masse, charge, etc. Un avantage important de la simulation probabiliste est qu’elle donne accès à la distribution détaillée des différentes observables de fission. On a par exemple accès à la distribution de la multiplicité en fonction de la masse du fragment $\bar{\nu}(A)$, ou de l’énergie cinétique totale des fragments.

Le but du calcul FIFRELIN est de pouvoir décrire la fission de façon prédictive, dès lors que l’on connaît les rendements en masse et en énergie cinétique des fragments pré-neutrons. Seuls cinq paramètres doivent en l’état actuel du code faire l’objet d’un ajustement sur l’expérience.

Ces cinq paramètres sont :

- R_T^{\min} et R_T^{\max} : les valeurs extrêmes du rapport de température des fragments ;
- k_r , qui est un paramètre permettant d’ajuster la rigidité du noyau pour le calcul de l’énergie de rotation ;
- σ^L et σ^H , les paramètres de *spin-cutoff* des fragments léger et lourd respectivement. Ces paramètres interviennent dans l’échantillonnage du moment angulaire total des fragments. Ils conditionnent le calcul de l’énergie de rotation, et donc la répartition en énergie d’excitation.

Le calcul FIFRELIN est donc, parmi les modèles que nous avons énumérés pour décrire le spectre, le plus rigoureux. Cependant, si beaucoup d’observables de fission sont très bien reproduites par le code, ce n’est pas le cas du PFNS. C’est ce que montrent les figures 2.11 et 2.12, qui représentent le spectre calculé par FIFRELIN pour la fission thermique de l’ ^{235}U et la fission spontanée du ^{252}Cf . Si la méthode de Monte-Carlo est plus rigoureuse que les approximations faites dans le modèle de Madland-Nix, elle requiert des données de structure mal connues pour la plupart des fragments, comme les densités de niveaux. De plus, on connaît mal les distributions en spin des fragments, et la paramétrisation de $R_T(A)$ n’est pas totalement satisfaisante. Pour toutes ces raisons, FIFRELIN n’est pas encore à même de donner une représentation satisfaisante du spectre des neutrons prompts de fission.

La section suivante est dédiée à l’étude des paramètres de modèle, dans le cadre Weisskopf, qui influent sur le spectre. Cette première étude permettra d’avoir des pistes par la suite pour améliorer la description du spectre dans FIFRELIN. La vocation de FIFRELIN est de calculer les différentes observables de fission de manière prédictive, sans ajustement. Une étude de l’influence des différents paramètres de modèle est donc nécessaire pour mieux reproduire le spectre sans passer par un ajustement. Cette étude ne sera pas faite pour le modèle de Madland-Nix, car bien que celui-ci soit également basé sur la théorie de Weisskopf, il n’a pas la même vocation prédictive. On verra dans le chapitre suivant qu’il permet de bien reproduire les données dans le cadre d’un ajustement.

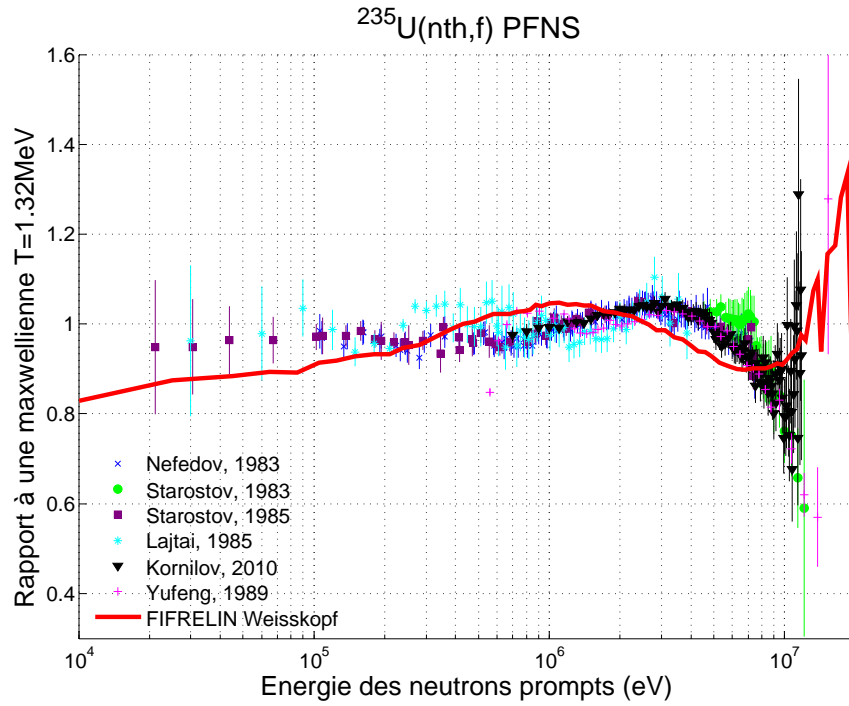


FIGURE 2.11 – Spectre de la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique, calculé par FIFRELIN, et comparé aux mesures présentées dans le chapitre 1.

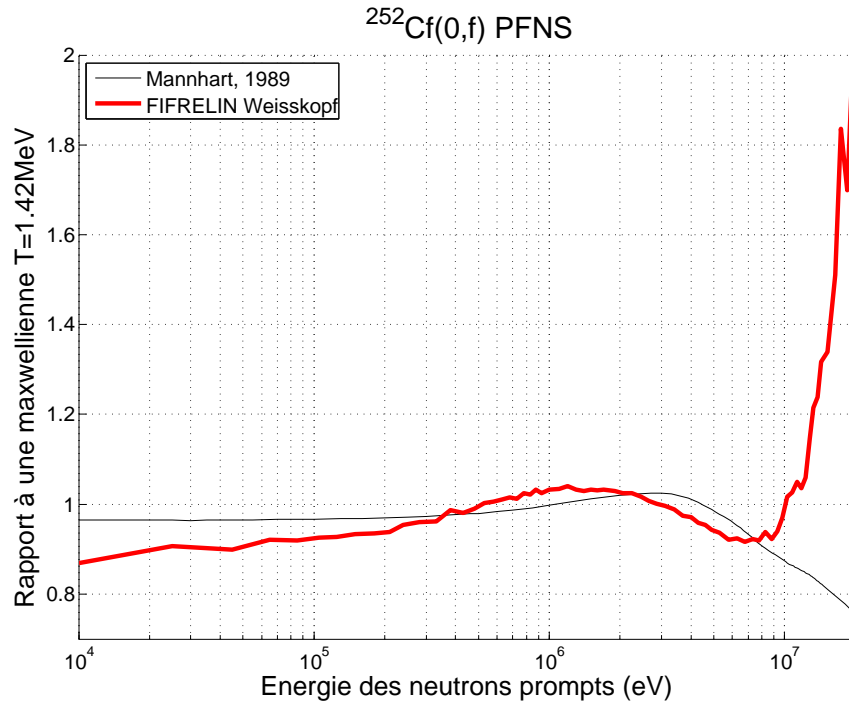


FIGURE 2.12 – Spectre de la fission spontanée du ^{252}Cf , calculé par FIFRELIN, et comparé à l'évaluation de Mannhart [49].

2.3 Influence des paramètres de modèle sur le spectre

Le modèle de Weisskopf de l'évaporation des noyaux excités, sert de base à plusieurs modèles de spectres de neutrons prompts de fission, notamment le modèle de Madland-Nix, et le code FIFRELIN en mode non couplé. La section efficace inverse, disparaît dans la normalisation lorsqu'on ne considère pas sa dépendance en énergie. On s'intéressera dans cette section à l'effet de la prise en compte de la dépendance en énergie de la section efficace inverse, et à ce que cela implique sur le calcul du spectre dans FIFRELIN. Dans un premier temps on rappellera la théorie de Weisskopf, puis on détaillera le calcul de la section efficace inverse, et enfin on verra le résultat en termes de spectre. On verra que cette amélioration du modèle ne permet pas à elle seule d'améliorer la description du spectre par FIFRELIN. On énumèrera donc en fin de section quelques autres paramètres de modèle à prendre en compte.

2.3.1 Rappels sur la théorie de Weisskopf

Le modèle de Weisskopf, développé dans la référence [79], traite de la désexcitation d'un noyau excité par émission de particules, ce qu'on désigne par « processus d'évaporation », et est basé sur des considérations statistiques. Il considère que le processus d'émission est indépendant du processus d'excitation du noyau. On considère donc seulement un noyau dans un certain état d'excitation énergétique, dont les propriétés sont indépendantes de comment il a été formé. Considérons un noyau A, qui dans notre cas est un fragment de fission, ayant une énergie d'excitation E_i^* au-dessus de l'énergie de son état fondamental. Ce noyau A émet une particule p , dans notre cas un neutron, avec une énergie cinétique dans ϵ . A devient alors le noyau B, c'est-à-dire le fragment résiduel après émission de neutron, avec une énergie d'excitation E_r^* au-dessus de son état fondamental. On fait l'approximation $E_r^* = E_i^* - S_n - \epsilon$, où S_n est l'énergie de séparation du neutron du fragment initial. Cela revient à négliger l'énergie de recul ϵ/A du fragment résiduel. La réaction s'écrit :



On veut déterminer la probabilité par unité de temps de la réaction 2.38. On note ρ_A la densité d'états de A à E_i^* , et $\rho_{(Bp)}$ la densité d'états du système (B à E_r^* , p). On note aussi $P_{(A \rightarrow B+p)}$ la probabilité par unité de temps de la réaction 2.38, et $P_{(B+p \rightarrow A)}$ la probabilité par unité de temps de la réaction dite « inverse », donc d'absorption de la particule par le noyau B :



D'après le principe de la balance détaillée [20], on a la relation suivante par l'invariance par renversement du temps :

$$\rho_A P_{(A \rightarrow B+p)} = \rho_{(Bp)} P_{(B+p \rightarrow A)} \quad (2.40)$$

La probabilité par unité de temps de la réaction 2.38 s'exprime donc en fonction de celle de la réaction inverse. Cette probabilité peut s'exprimer en fonction de la section efficace de la réaction inverse $\sigma_c(\epsilon)$, en considérant que B et p sont contenus dans un volume Ω :

$$P_{(B+p \rightarrow A)} = \sigma_c(\epsilon) \cdot \frac{v}{\Omega} = \sigma_c(\epsilon) \cdot \frac{\sqrt{2\epsilon}}{\Omega\sqrt{m}} \quad (2.41)$$

où $v = \sqrt{2\epsilon/m}$ est la vitesse de la particule, et m sa masse. Pour calculer $P_{(A \rightarrow B+p)}$ suivant l'équation 2.40, on a également besoin des densités d'états pour le noyau A et pour le système

(B, p). Pour ce qui est des noyaux, on considère que les états disponibles correspondent aux différents niveaux énergétiques, sans considération de moment angulaire ni de parité. La densité d'état est donc la densité de niveaux énergétiques $\omega(E^*)$ à l'énergie d'excitation du noyau. On a donc $\rho_A = \omega_A(E_i^*)$. La densité d'états disponibles pour le noyau B est $\omega_B(E_r^*)$. Le nombre d'états quantiques disponibles pour la particule p , dans le volume Ω et dans l'intervalle d'énergie $d\epsilon$ est :

$$\frac{\Omega g m}{2\pi^2 \hbar^3} \cdot \sqrt{2m\epsilon} \, d\epsilon \quad (2.42)$$

où g est le nombre de valeur possibles de la projection du spin de la particule p . Dans notre cas où p est un neutron, $g = 2$. En reprenant l'équation 2.40, on a finalement :

$$P_{(A \rightarrow B+p)} = \sigma_c(\epsilon) \cdot \frac{g m \epsilon}{\pi^2 \hbar^3} \cdot \frac{\omega_B(E_r^*)}{\omega_A(E_i^*)} \cdot d\epsilon \quad (2.43)$$

Exprimons 2.43 en termes d'entropie des noyaux A et B :

$$S_{A,B}(E^*) = \ln(\omega_{A,B}(E^*)) \quad (2.44)$$

On se place ici dans un système d'unités dans lequel la constante de Boltzmann $k_B = 1$. On a alors :

$$\begin{aligned} \frac{\omega_B(E_r^*)}{\omega_A(E_i^*)} &= e^{S_B(E_i^* - S_n - \epsilon) - S_A(E_i^*)} \\ &= e^{S_B(E_i^* - S_n) - \epsilon \cdot \frac{dS_B}{dE}(E_i^* - S_n) - S_A(E_i^*)} \end{aligned} \quad (2.45)$$

en faisant l'hypothèse que $\epsilon \ll E_i^* - S_n$. Weisskopf a montré que les termes supérieurs dans le développement de $S_B(E_i^* - S_n - \epsilon)$ n'ont pas une grande influence. On peut définir une température $T_B(E^*)$ pour le noyau B, reliée à l'entropie par :

$$\frac{dS_B}{dE^*} = \frac{1}{T_B(E^*)} \quad (2.46)$$

L'équation 2.43 devient :

$$P_{(A \rightarrow B+p)} = \sigma_c(\epsilon) \cdot \frac{g m \epsilon}{\pi^2 \hbar^3} \cdot e^{S_B(E_i^* - S_n) - S_A(E_i^*)} \cdot e^{-\epsilon/T_B(E_i^* - S_n)} \cdot d\epsilon \quad (2.47)$$

$$= \text{const} \cdot \sigma_c(\epsilon) \cdot \epsilon \cdot e^{-\epsilon/T_B(E_i^* - S_n)} \cdot d\epsilon \quad (2.48)$$

Le spectre $\phi(\epsilon)$ de Weisskopf est défini de façon à ce que $\phi(\epsilon)d\epsilon$ soit la probabilité que l'énergie du neutron émis se trouve dans $[\epsilon, \epsilon + d\epsilon]$, dans le référentiel du centre de masse. Elle doit être normalisée, c'est-à-dire que c'est la probabilité par unité de temps d'émettre un neutron dans un intervalle d'énergie donné sur la probabilité d'émettre un neutron. Donc :

$$\phi(\epsilon)d\epsilon = \frac{P_{(A \rightarrow B+p)}d\epsilon}{\int_0^\infty P_{(A \rightarrow B+p)}dE'} = k(T) \cdot \sigma_c(\epsilon) \cdot \epsilon \cdot e^{-\epsilon/T} \cdot d\epsilon \quad (2.49)$$

où :

$$k(T) = \left(\int_0^\infty \sigma_c(E') \cdot E' \cdot e^{-E'/T} dE' \right)^{-1} \quad (2.50)$$

$T = T_B(E_i^* - S_n)$ est la température résiduelle du fragment de fission. Bien que le concept de température du noyau soit difficile à appréhender dans ce domaine d'application, comme expliqué dans la référence [20], on peut imaginer que cette température corresponde à celle du fragment, lorsque le neutron est libre mais n'a pas encore emporté son énergie ϵ .

Si la section efficace inverse est supposée constante par rapport à l'énergie, alors le spectre de Weisskopf « sans section efficace inverse » $\phi_0(\epsilon)$ s'exprime :

$$\phi_0(\epsilon)d\epsilon = \frac{\epsilon}{T^2} e^{-\epsilon/T} d\epsilon \quad (2.51)$$

Les équations 2.49 et 2.51 sont valables tant que :

- Le nombre de nucléons du fragment initial est suffisamment élevé ($A \gg 1$),
- $\epsilon \ll E_i^* - S_n$, i.e. l'énergie du neutron sortant est petite comparée à l'énergie d'excitation initiale du fragment de fission,
- $d\epsilon$ est suffisamment grand pour que le fragment secondaire ait un nombre raisonnable de niveaux disponibles entre $E_i^* - S_n - (\epsilon + d\epsilon)$ et $E_i^* - S_n - \epsilon$.

Nous allons à présent voir comment calculer la section efficace inverse, afin de l'inclure au calcul FIFRELIN.

2.3.2 Calcul de la section efficace inverse

Pour modéliser le spectre lorsqu'on considère un spectre de Weisskopf dans le centre de masse, il faut connaître $\sigma_c(E)$ pour chaque fragment de fission. Dans le cas du modèle de Madland-Nix, où on considère deux fragments de fission « moyens » : $\langle A_L \rangle$ et $\langle A_H \rangle$, il faut connaître la section efficace inverse pour chacun de ces deux fragments. Dans le cas de FIFRELIN, les fragments de fission sont échantillonnés suivant leurs distributions. Il faut alors connaître la section efficace inverse de tous les isotopes susceptibles d'être des fragments de fission.

Pour un fragment (A, Z) , la section efficace inverse est la section efficace de la réaction :

$$(A - 1, Z) + n \longrightarrow (A, Z) \quad (2.52)$$

Cette section efficace de formation du noyau composé par absorption neutronique n'est pas disponible dans les évaluations. Pour la calculer, on utilise le modèle optique, qui sert à décrire l'interaction des nucléons avec les noyaux [21, 30], en modélisant l'interaction noyau-nucléon par un potentiel complexe. La partie réelle du potentiel concerne la diffusion élastique et la partie imaginaire l'absorption. On fait l'hypothèse qu'une même paramétrisation du potentiel peut décrire l'interaction de neutrons d'énergies différentes avec des noyaux de masses atomiques différentes. Plusieurs paramétrisations du potentiel existent, chacune optimisée pour un domaine d'application. Ce modèle permet de bien reproduire la forme générale des sections efficaces de réactions neutroniques, pour des énergies de neutrons incidents relativement élevées. Cela ne permet cependant pas de reproduire les résonances. Pour calculer $\sigma_c(E)$, on utilisera des potentiels optiques sphériques, c'est à dire valides pour des noyaux peu déformés.

Le code SCAT-2 [6, 59], écrit en FORTRAN, est issu d'une collaboration entre le CEA/DAM et l'Université de Bucarest (Roumanie). Il permet des calculs de sections efficaces pour des particules incidentes comme le neutron, le proton, l'alpha, etc., via le modèle optique sphérique. Dans notre cas, c'est la section efficace de réaction qui nous intéresse, soit la différence

Système fissionnant	Fragment léger	Fragment lourd
$^{252}\text{Cf}(0,\text{f})$	$^{42}_{108}\text{Mo}$	$^{56}_{144}\text{Ba}$
$^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	$^{38}_{96}\text{Sr}$	$^{54}_{140}\text{Xe}$
$^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	$^{40}_{100}\text{Zr}$	$^{54}_{140}\text{Xe}$

TABLE 2.1 – Fragmentation la plus probable dans le cas de la fission de l' ^{235}U et du ^{239}Pu induites par neutron thermique, et dans le cas de la fission spontanée du ^{252}Cf .

entre la section efficace totale et la section efficace élastique.

Le code CONRAD [2] pour l'évaluation des données nucléaires, développé au CEA Cadarache et qu'on présentera plus longuement au chapitre 3, permet de faire des calculs de modèle optique utilisant un algorithme équivalent à celui de SCAT-2. CONRAD est cependant plus souple d'utilisation du fait qu'il soit écrit en C++ (pas de limitations de taille pour la grille en énergie, etc.). De plus, un grand nombre de paramétrisations du potentiel optique peuvent être utilisées via CONRAD, entre autres, celles dont les paramètres sont renseignés dans la base RIPL-3 [12]. Après avoir vérifié la cohérence des résultats fournis par les deux codes, il a été décidé d'utiliser CONRAD. Les sections efficaces ont été calculées en utilisant trois paramétrisations différentes du potentiel optique : celle de Becchetti-Greenlees [4], celle de Köning-Delaroche [39], et celle de Morillon-Romain [51]. Les paramètres de ces trois potentiels optiques sphériques sont disponibles dans RIPL-3.

Par ailleurs, pour les fragments moyens de la fission de l' ^{235}U , du ^{239}Pu et de la fission spontanée du ^{252}Cf , on dispose de valeurs de la section efficace inverse calculées par Madland et disponibles dans RIPL-3. Cependant, Madland a pris le parti de considérer la section efficace d'absorption neutronique du fragment, et non du fragment moins un neutron. La table 2.1 donne les fragments moyens issus de la fission de l' ^{235}U et du ^{239}Pu induite par neutron thermique, ainsi que de la fission spontanée du ^{252}Cf . Les figures 2.13 à 2.17 représentent la section efficace inverse pour chacun des fragments de la table 2.1, calculée par CONRAD via les trois potentiels optiques : Becchetti-Greenlees, Köning-Delaroche et Morillon-Romain, ainsi que les valeurs de Madland.

On observe des similarités entre les sections efficaces inverses des fragments légers (^{108}Mo , ^{96}Sr , ^{100}Zr) d'une part, et entre celles des fragments lourds (^{140}Xe , ^{144}Ba) d'autre part. Les valeurs de Madland correspondent au calcul de modèle optique via le potentiel de Becchetti-Greenlees dans le cas du ^{108}Mo et du ^{144}Ba , c'est-à-dire pour les fragments moyens de la fission spontanée du ^{252}Cf . Dans les cas des autres fragments moyens, elles suivent globalement la tendance des valeurs calculées via Becchetti-Greenlees.

Le potentiel de Becchetti-Greenlees aboutit à une section efficace sensiblement différente relativement aux deux autres potentiels, généralement plus élevée sur une grande partie du domaine d'énergie. Cependant, dans le modèle de Weisskopf, seule la forme de la section efficace en fonction de l'énergie importe, puisque le facteur de norme disparaît dans la constante de normalisation. Les potentiels de Köning-Delaroche et de Morillon-Romain aboutissent à des formes relativement similaires pour la section efficace.

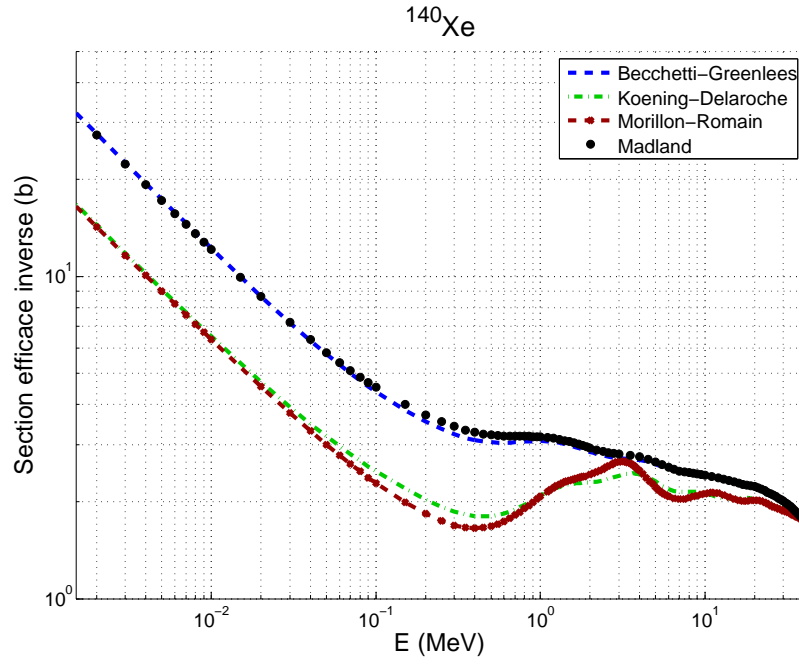


FIGURE 2.13 – Section efficace inverse du ^{140}Xe , calculée avec CONRAD pour les potentiels optiques de Becchetti-Greenlees, K  ning-Delaroche et Morillon-Romain, compar  e aux valeurs de Madland.

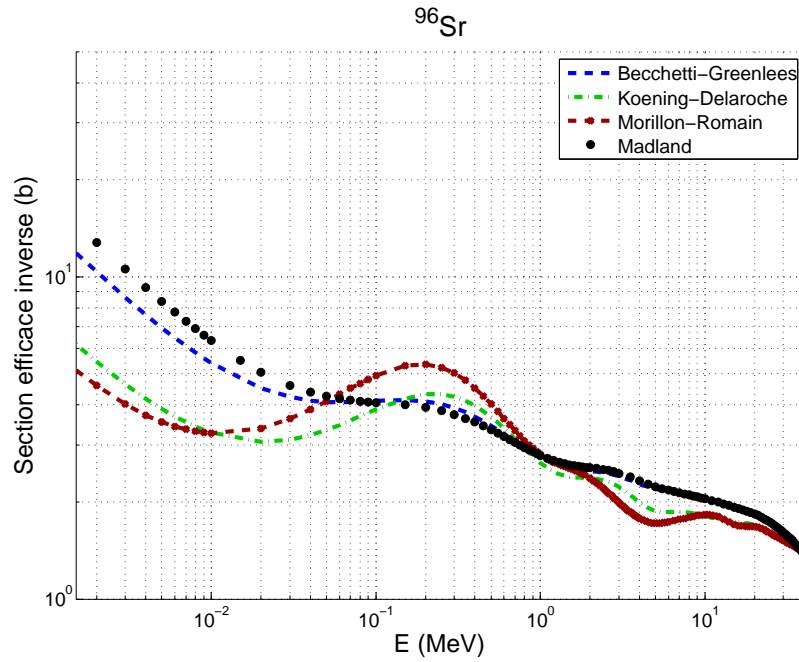


FIGURE 2.14 – Section efficace inverse du ^{96}Sr , calcul  e avec CONRAD pour les potentiels optiques de Becchetti-Greenlees, K  ning-Delaroche et Morillon-Romain, compar  e aux valeurs de Madland.

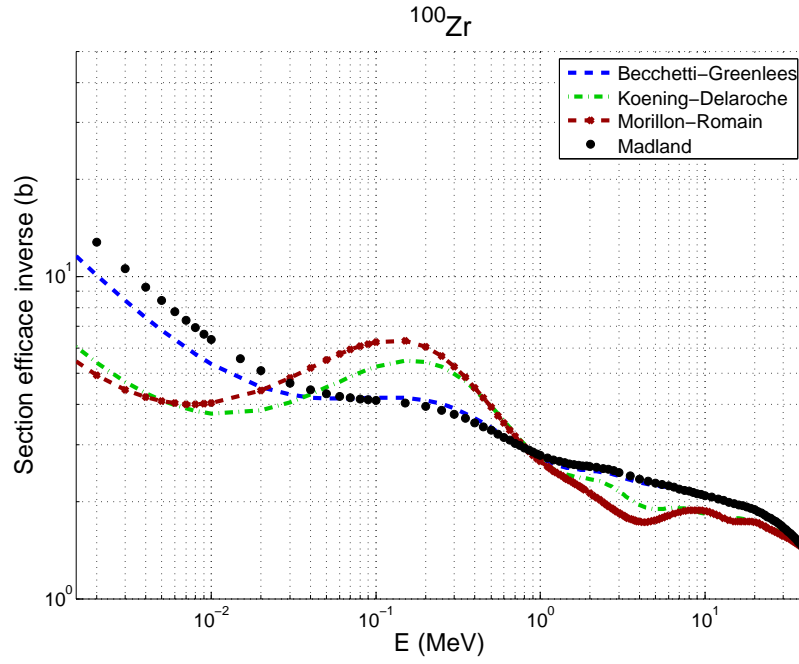


FIGURE 2.15 – Section efficace inverse du ^{100}Zr , calculée avec CONRAD pour les potentiels optiques de Becchetti-Greenlees, K  ning-Delaroche et Morillon-Romain, compar  e aux valeurs de Madland.

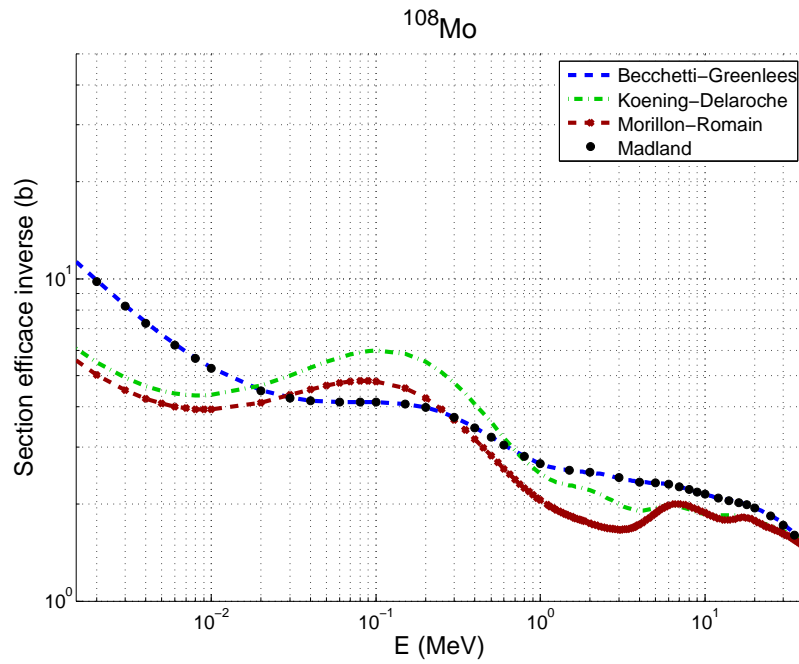


FIGURE 2.16 – Section efficace inverse du ^{108}Mo , calcul  e avec CONRAD pour les potentiels optiques de Becchetti-Greenlees, K  ning-Delaroche et Morillon-Romain, compar  e aux valeurs de Madland.

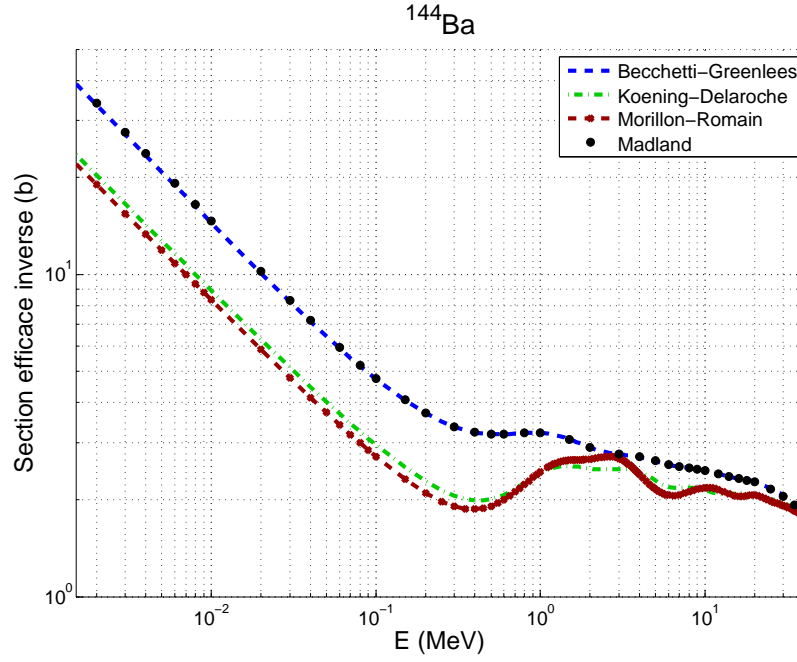


FIGURE 2.17 – Section efficace inverse du ^{144}Ba , calculée avec CONRAD pour les potentiels optiques de Becchetti-Greenlees, K  ning-Delaroche et Morillon-Romain, compar  e aux valeurs de Madland.

Globalement, la section efficace inverse est d'autant plus   lev  e que l'  nergie du neutron est faible. Cependant, on ne peut pas en d  duire que les basses   nergies de neutron seront toujours favoris  es, par rapport au cas avec section efficace inverse constante. En effet, le rapport des spectres de Weisskopf avec section efficace inverse d  pendante de l'  nergie et avec section efficace inverse constante vaut :

$$\frac{\phi(E)}{\phi_0(E)} = \frac{k(T) \sigma_c(E) E e^{-E/T}}{(E/T^2) e^{-E/T}} = T^2 k(T) \sigma_c(E) \quad (2.53)$$

Ce rapport d  pend de la temp  rature du fragment. Pour exemple, la figure 2.18 montre le spectre de Weisskopf pour le ^{140}Xe , qui est un fragment lourd de la fission induite de l' ^{235}U , pour une temp  rature nucl  aire de 1 MeV. La figure 2.19 montre le spectre de Weisskopf pour la m  me temp  rature nucl  aire, pour le fragment l  ger correspondant, soit le ^{96}Sr . On voit que dans le cas du fragment lourd, pour lequel la pente de la section efficace est tr  s forte, le spectre augmente beaucoup    basse   nergie par rapport au cas o   on consid  re la section efficace inverse constante. Dans le cas du fragment l  ger, pour lequel la section efficace inverse d  cro  t plus lentement avec l'  nergie, la diff  rence entre les spectre de Weisskopf avec et sans section efficace inverse est moins marqu  e.

Dans le cas du spectre de Madland-Nix avec section efficace inverse d  pendante de l'  nergie, on a une int  gration sur la temp  rature du fragment. Le spectre Madland-Nix calcul   avec une section efficace inverse d  pendante de l'  nergie n'est donc pas n  cessairement plus fort    basse   nergie, que dans le cas avec σ_c constante. C'est ce que montre la figure 2.20, sur laquelle sont repr  sent  s le spectre de Madland-Nix avec section efficace inverse constante pour la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique, ainsi que le spectre Madland-Nix en tenant compte de la section efficace inverse (valeurs de Madland). A plus forte raison, le spectre FIFRELIN,

pour lequel on a la contribution de tous les fragments à diverses températures, ne sera pas nécessairement plus fort à basse énergie du fait de l'inclusion de la section efficace inverse.

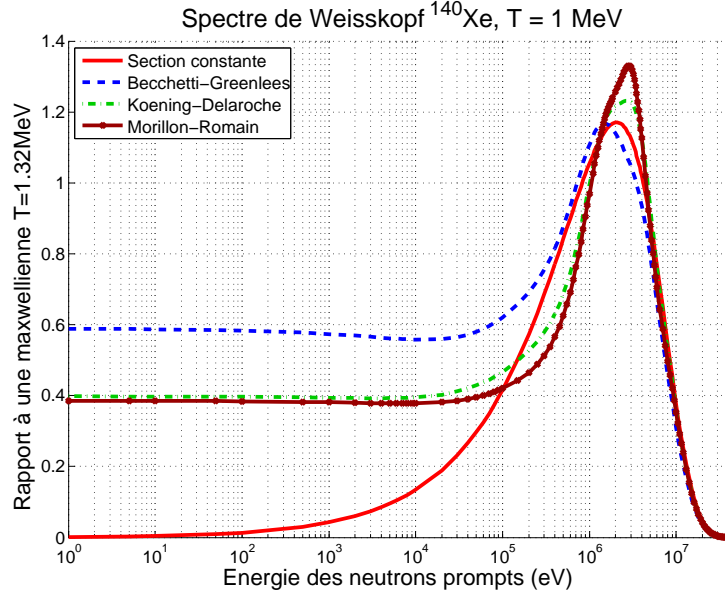


FIGURE 2.18 – Spectre de Weisskopf (équation 2.49) pour le ^{140}Xe , pour $T = 1$ MeV, avec section efficace constante ou bien calculée via l'un des trois potentiels optiques avec CONRAD. Le spectre est rapporté à une maxwellienne.

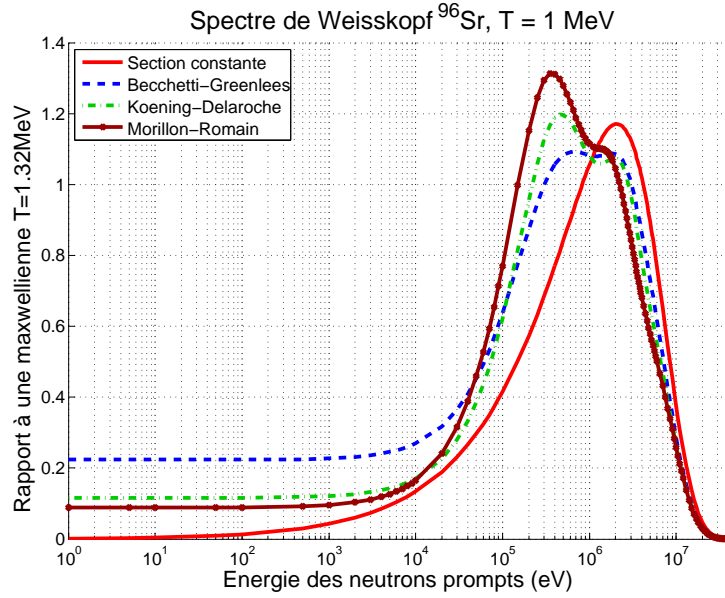


FIGURE 2.19 – Spectre de Weisskopf (équation 2.49) pour le ^{96}Sr , pour $T = 1$ MeV, avec section efficace constante ou bien calculée via l'un des trois potentiels optiques avec CONRAD. Le spectre est rapporté à une maxwellienne.

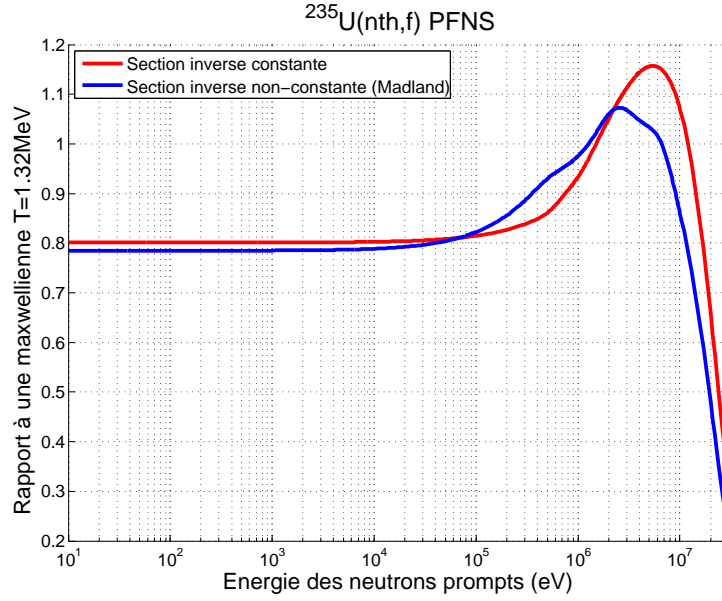


FIGURE 2.20 – Spectre de Madland-Nix pour la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique : cas avec section efficace inverse constante, et cas avec section efficace inverse dépendante de l'énergie (valeurs de Madland considérées pour la section efficace inverse).

2.3.3 Influence de la section efficace inverse sur le spectre FIFRELIN et recherche de paramètres optimaux

Le calcul FIFRELIN en mode non couplé prévoit la possibilité d'inclure une section efficace inverse dans le modèle de Weisskopf. Ceci implique de tabuler la section efficace inverse $\sigma_c(E)$ pour chaque fragment possible, ainsi que la constante de normalisation $k(T)$ pour chaque température de fragment, pour chaque fragment possible. En effet, un calcul « en ligne » de la section efficace inverse et de $k(T)$ ralentirait trop le calcul. Un calcul avec section efficace inverse tabulée prend environ dix heures pour un million de fissions. Afin de couvrir le plus de noyaux possibles, on a généré cette section efficace pour plus d'un millier de noyaux. Après avoir calculé $\sigma_c(E)$ et $k(T)$ en utilisant CONRAD, pour chacun des trois potentiels optiques, et les avoir tabulées, on a comparé les résultats sur le calcul du spectre. La comparaison a été faite pour la fission spontanée du ^{252}Cf et pour la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique. Les nouveaux spectres sont comparés au cas avec section efficace inverse constante sur la figure 2.21. On observe que l'inclusion de la dépendance en énergie de la section efficace inverse détériore le spectre, plutôt que d'aboutir à un meilleur accord avec les mesures, comme on l'avait espéré. Cette tendance avait déjà été observée dans une précédente étude [48]. Cependant, la forme de la multiplicité en fonction de la masse des fragments n'est pas impactée. Les trois sections efficaces calculées aboutissent à la même tendance sur le spectre : moins de neutrons émis dans les ailes du spectre, et plus de neutrons émis entre 100-200 keV et 3 MeV. On observe que malgré la forte décroissance de la section efficace inverse avec l'énergie, la prise en compte de celle-ci n'implique pas que l'on émette plus de neutrons dans les très basses énergies. Ceci est dû au fait que la température évolue différemment pour chaque fragment et après chaque émission de neutron. En revanche, en observant les énergies moyennes des spectres FIFRELIN avec et sans section efficace inverse qui sont données sur la même figure, on voit qu'on a bien un adoucissement global du spectre lorsque l'on considère la dépendance en énergie de $\sigma_c(E)$.

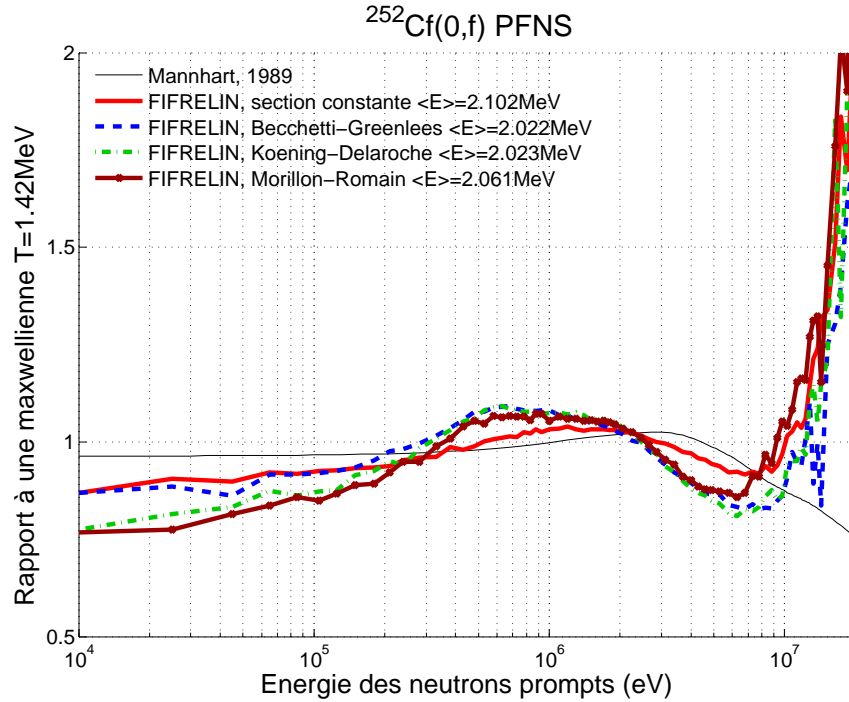
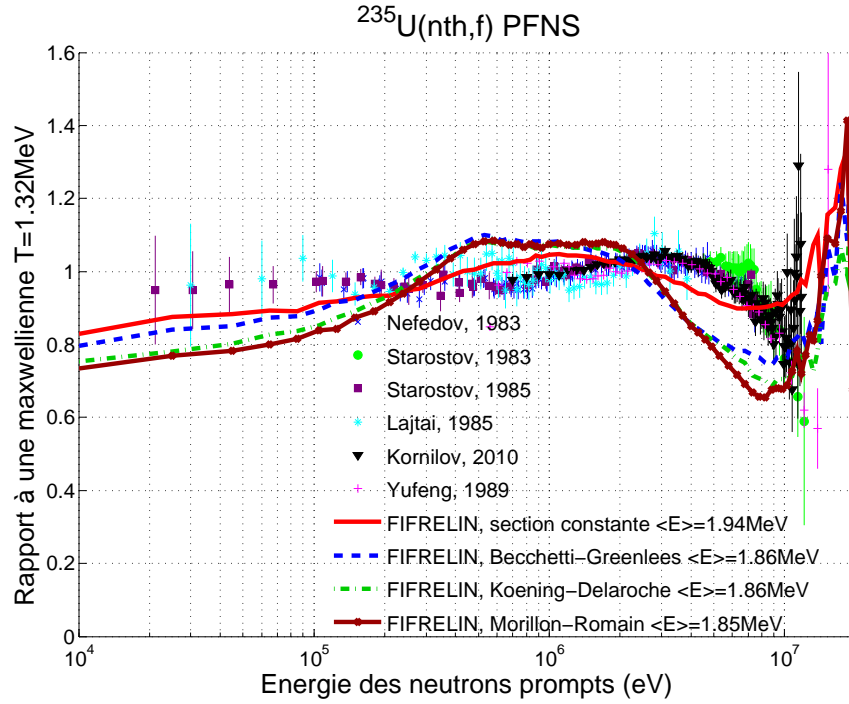


FIGURE 2.21 – Spectre de la fission thermique de ^{235}U (a) et de la fission spontanée de ^{252}Cf (b) obtenu via le calcul FIFRELIN : cas sans section efficace inverse, et cas avec section efficace inverse venant des potentiels optiques de Becchetti-Greenlees, de Koning-Delaroche et de Morillon-Romain. Le spectre est présenté comme un rapport à une maxwellienne. Dans le cas de ^{235}U , on compare aux mesures disponibles, et pour le ^{252}Cf le spectre est comparé à l'évaluation de Mannhart [49]. L'incertitude statistique sur l'énergie moyenne du spectre est de l'ordre du keV.

Paramètre	Valeur optimale	
	$^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$	$^{252}\text{Cf}(0, \text{f})$
R_T^{\min}	0.9	0.4
R_T^{\max}	1.35	1.55
k_r	1	0.33
σ^{L}	$9\hbar$	$5.5\hbar$
σ^{H}	$9\hbar$	$6.0\hbar$

TABLE 2.2 – Paramètres de modèle pour le calcul FIFRELIN de la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique et pour la fission spontanée du ^{252}Cf , lorsqu'on ne considère pas de section efficace inverse. Ils permettent de bien reproduire $\bar{\nu}(A)$ ainsi que le rapport des multiplicités $\bar{\nu}_L/\bar{\nu}_H$.

Un travail préliminaire a été effectué en vue d'identifier les paramètres de modèle influents sur le spectre dans FIFRELIN, afin d'améliorer la description du spectre lorsque l'on considère la dépendance en énergie de la section efficace inverse. Il faut noter que FIFRELIN ne bénéficie pas encore d'un raccordement à un moteur d'ajustement de paramètres de modèle, bien qu'une étude ait été entamée dans ce sens (voir référence [61]). En effet, utiliser un algorithme de minimisation requiert que la convergence soit suffisante pour que, lorsqu'on calcule la dérivée numérique du modèle aux paramètres, la variation du spectre dû à la variation des paramètres soit supérieure aux incertitudes du Monte-Carlo. Le temps de calcul devient rapidement rédhibitoire.

Comme on l'a dit plus haut, il y a cinq paramètres d'entrée du code FIFRELIN, qui doivent être optimisés pour chaque système fissionnant. Il s'agit des paramètres R_T^{\min} et R_T^{\max} qui régissent le rapport de température entre les deux fragments, les *spin cutoff* des fragments σ^{L} et σ^{H} , ainsi que la proportion de moment d'inertie « rigide » k_r . Ces paramètres sont choisis pour bien reproduire en particulier la multiplicité moyenne totale. Les paramètres optimaux pour la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique et pour la fission spontanée du ^{252}Cf sont donnés dans la table 2.2. Le premier axe de travail a consisté à chercher un nouveau jeu de paramètres qui permette de mieux reproduire le spectre et l'énergie moyenne des neutrons prompts.

Dans un premier temps, on s'est focalisé sur le spectre de la fission spontanée du ^{252}Cf . Pour chacun des cinq paramètres d'entrée (sauf pour R_T^{\max} qui doit toujours être supérieur à 1), on a choisi deux valeurs pour encadrer les valeurs optimales du cas avec section efficace inverse constante :

$$\begin{cases} R_T^{\min} &= [0.2, 0.6] \\ R_T^{\max} &= 2.3 \\ k_r &= [0.1, 0.5] \\ \sigma^{\text{L}} &= [5\hbar, 6\hbar] \\ \sigma^{\text{H}} &= [5.5\hbar, 6.5\hbar] \end{cases} \quad (2.54)$$

Toutes les combinaisons de ces paramètres ont été testées pour la fission spontanée du ^{252}Cf , pour σ_c constante et pour chacune des trois sections efficaces inverses. La figure 2.22 montre le spectre associé à chaque jeu de paramètres, dans le cas de σ_c calculée avec le potentiel de Morillon-Romain. Il en ressort que c'est surtout le paramètre R_T^{\max} qui est influent ici ; cependant, aucune combinaison ne permet d'améliorer la tendance.

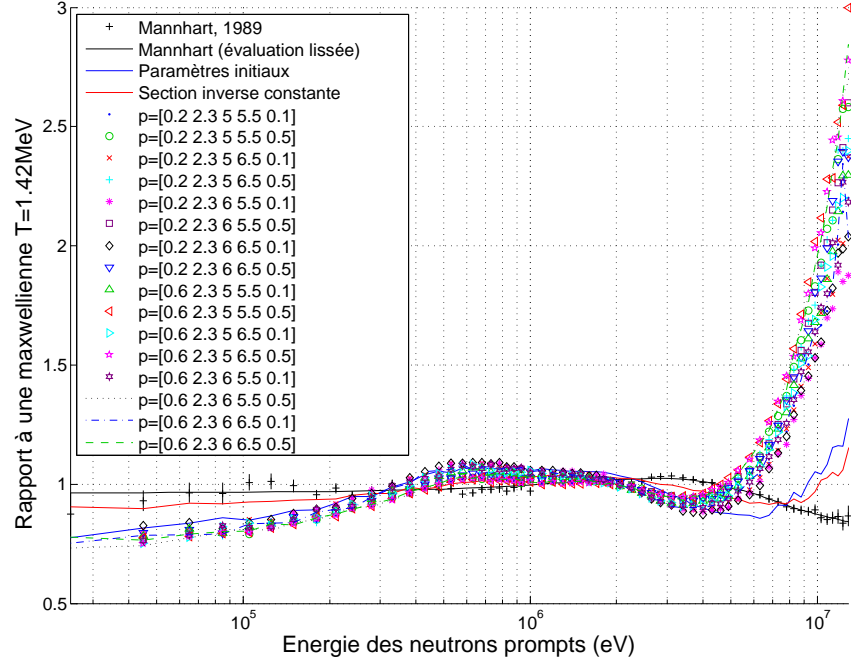


FIGURE 2.22 – Spectre de la fission spontanée du ^{252}Cf calculé par FIFRELIN avec section efficace inverse Morillon-Romain, pour chaque jeu de paramètres $p = [R_T^{\min}, R_T^{\max}, \sigma^L, \sigma^H, k_T]$. Ces calculs sont comparés au calcul Morillon-Romain avec les paramètres de la table 2.2 (courbe bleue), ainsi qu’au calcul avec section efficace inverse constante (courbe rouge), et à l’évaluation de Mannhart.

Un autre paramètre important du modèle, est le paramètre de densité de niveaux a . On a vu que dans le modèle de Madland-Nix, a est proportionnel au nombre de masse du fragment. Dans FIFRELIN, a s’exprime via la formule empirique d’Ignatyuk [32], dans laquelle a dépend de l’énergie d’excitation du fragment. Dans cette formule, a est fonction d’un paramètre de densité de niveaux asymptotique \tilde{a} , de l’énergie de correction de couches δW , qui correspond à la différence entre la masse expérimentale du fragment et sa masse dans un modèle de goutte liquide, d’un facteur d’amortissement noté γ , et de l’énergie Δ d’appariement des nucléons :

$$a = \tilde{a} \left[1 + \frac{\delta W}{E^* - \Delta} (1 - e^{-\gamma(E^* - \Delta)}) \right] \quad (2.55)$$

Le paramètre de densité de niveaux asymptotique \tilde{a} , est calculé dans FIFRELIN en utilisant le « composite Gilbert-Cameron model » (CGCM) [22] :

$$\tilde{a}^{\text{CGCM}} = \alpha A + \beta A^{2/3} \quad (2.56)$$

Les valeurs de α et β proviennent de RIPL, et valent $\alpha = 6.926 \times 10^{-2} \text{ MeV}^{-1}$ et $\beta = 0.2828 \text{ MeV}^{-1}$.

On a considéré trois paramétrisations différentes pour le paramètre de densité de niveaux asymptotique : celle du CGCM, ainsi que $\tilde{a} = A/(8 \text{ MeV})$ et $\tilde{a} = A/(11 \text{ MeV})$. La figure 2.23 montre les paramètres de densité de niveaux déduits de l'expérience [47] avec l'approximation $a = A/K$ pour trois valeurs de K . On voit que $K = 8 \text{ MeV}$ est la droite la plus proche des points « expérimentaux ». Cependant, $K = 11 \text{ MeV}$ est plus proche des valeurs « expérimentales » pour les fragments moyens de la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique. Les trois paramétrisations pour le paramètre de densité de niveaux asymptotique sont comparées sur la figure 2.24.

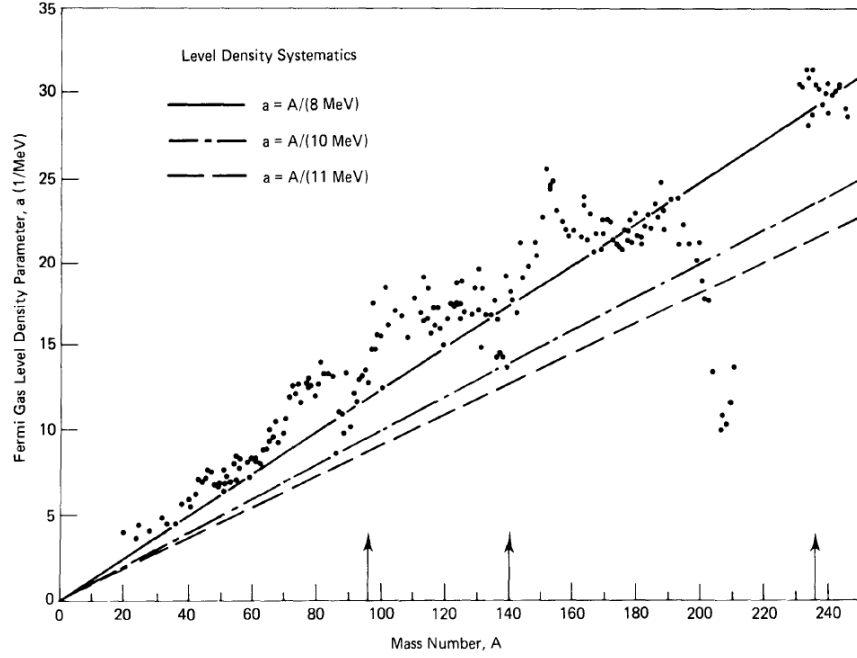


FIGURE 2.23 – Paramètre de densité de niveaux en fonction du nombre de masse des fragments (figure de la référence [47]). Les points sont des valeurs déduites de l'expérience dans le cadre du modèle du gaz de Fermi. L'approximation $a = A/K$ est également représentée, pour $K = 8 \text{ MeV}$, 10 MeV et 11 MeV . Les flèches désignent les masses moyennes des fragments ainsi que celle du noyau fissionnant dans la fission de première chance de l' ^{235}U induite par neutron.

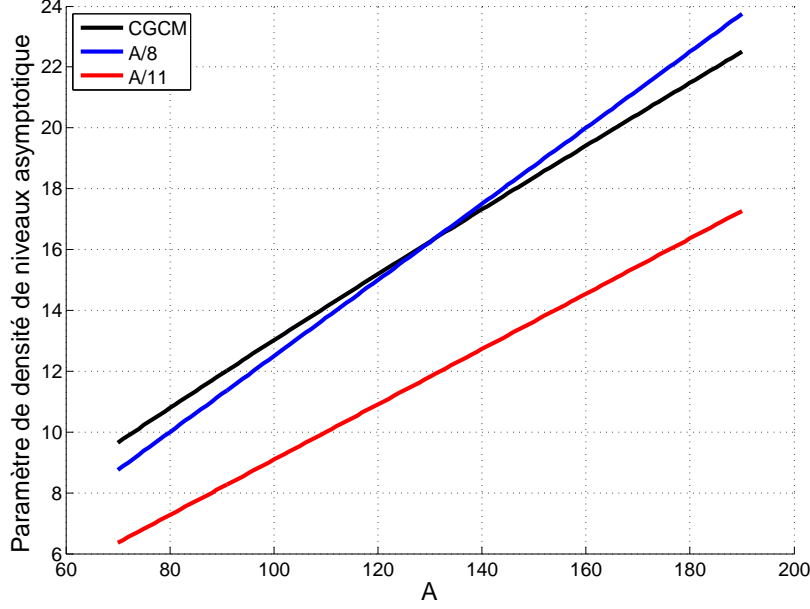


FIGURE 2.24 – Paramètre de densité de niveaux asymptotique de la formule d’Ignatyuk, en fonction du nombre de masse des fragments, dans le cadre du CGCM et des approximations $\tilde{a} = A/(8 \text{ MeV})$ et $\tilde{a} = A/(11 \text{ MeV})$.

Afin d’observer si la modification du paramètre de densité de niveaux permet d’améliorer la description du spectre lorsque l’on considère la section efficace inverse dépendante de l’énergie, on a testé le calcul FIFRELIN avec section efficace inverse dépendante de l’énergie pour chacune des trois paramétrisations de \tilde{a} mentionnées. On a également testé le paramètre de densité de niveaux utilisé par Madland et Nix dans leur modèle : $a = A/(11 \text{ MeV})$. La tendance est la même quel que ce soit le potentiel optique utilisé pour calculer $\sigma_c(E)$. On ne montrera donc les résultats que pour le potentiel optique de Köning-Delaroche. La figure 2.25 montre le spectre issu de ces calculs, pour l’ ^{235}U et le ^{252}Cf . On observe que les paramétrisations $\tilde{a} = A/(8 \text{ MeV})$ et \tilde{a}^{CGCM} donnent des résultats équivalents. En effet, on voit sur la figure 2.24 que ces deux paramétrisations sont très proches. Avec le modèle d’Ignatyuk en prenant $\tilde{a} = A/(11 \text{ MeV})$, le spectre du ^{252}Cf au-dessous de 200 keV se rapproche de l’évaluation de Mannhart, bien qu’on soit encore bien en-dessous ; cependant au-delà de 200 keV, il n’y a aucune modification notable par rapport au cas \tilde{a}^{CGCM} . En revanche, dans le cas de l’ ^{235}U , $\tilde{a} = A/(11 \text{ MeV})$ offre une nette amélioration du spectre entre 400 keV et 5 MeV, c’est-à-dire dans le domaine d’énergie où sont émis la majorité des neutrons prompts. On observe également que le cas $a = A/(11 \text{ MeV})$ donne un spectre très différent du cas de la formule d’Ignatyuk avec $\tilde{a} = A/(11 \text{ MeV})$. Dans le cas $a = A/(11 \text{ MeV})$, c’est la partie du spectre supérieure à 1 MeV qui est impactée. Cela conduit à une amélioration dans le cas de l’ ^{235}U et à une détérioration dans le cas du ^{252}Cf . La table 2.3 montre l’énergie moyenne du spectre obtenue dans chaque cas, pour l’ ^{235}U et le ^{252}Cf . Les cas $\tilde{a} = A/(8 \text{ MeV})$ et $\tilde{a} = \alpha A + \beta A^{2/3}$ donnent toujours des résultats très similaires. Dans la table, on donne aussi l’énergie moyenne du spectre maxwellien de référence pour l’ ^{235}U et le ^{252}Cf . L’énergie moyenne qui s’en rapproche le plus pour le ^{252}Cf est obtenue en considérant a de la formule d’Ignatyuk pour $\tilde{a} = A/(11 \text{ MeV})$. Pour le ^{235}U en revanche, elle est obtenue en considérant $a = A/(11 \text{ MeV})$.

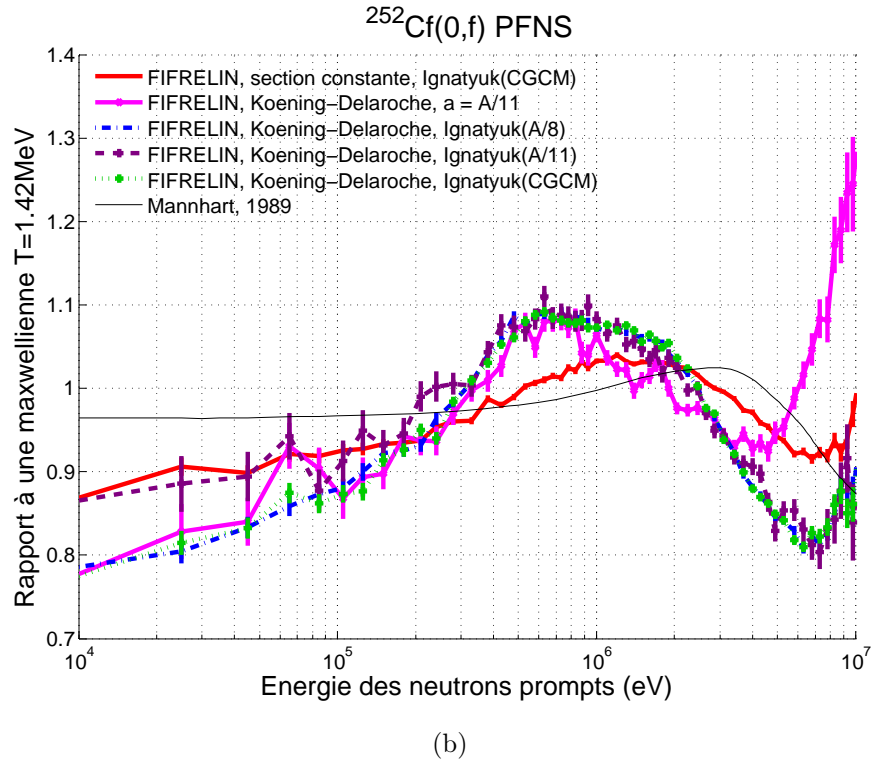
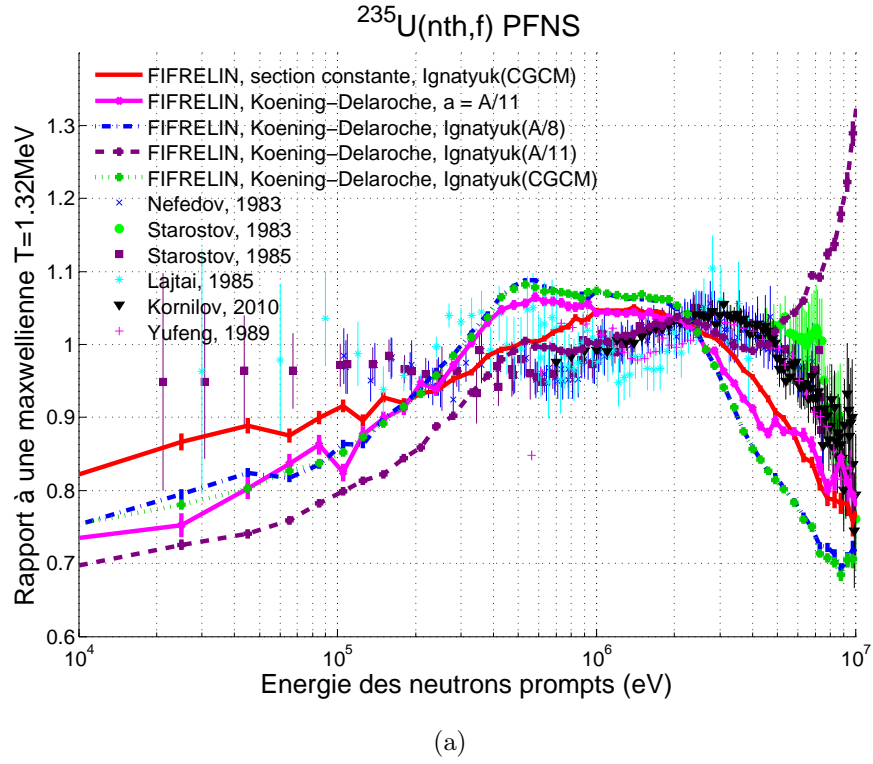


FIGURE 2.25 – Spectre de la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique (a), et de la fission spontanée du ^{252}Cf (b), calculés par FIFRELIN. Le cas avec section efficace inverse constante est calculé avec un paramètre de densité de niveaux a du modèle de d'Ignatyuk pour \tilde{a}^{CGCM} (voir texte). Les cas avec section efficace inverse calculée avec le potentiel optique de Köning-Delaroche, sont calculés avec différents paramètres de densité de niveaux asymptotiques du modèle de d'Ignatyuk, ainsi que pour le cas $a = A/(11 \text{ MeV})$.

	Energie moyenne du spectre (MeV)	
	$^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$	$^{252}\text{Cf}(0,\text{f})$
$\tilde{a} = A/(8 \text{ MeV})$	1.86	2.02
$\tilde{a} = A/(11 \text{ MeV})$	2.03	2.02
$a = A/(11 \text{ MeV})$	1.91	2.13
\tilde{a}^{CGCM}	1.86	2.02
Maxwellienne	1.98	2.13

TABLE 2.3 – Energie moyenne des neutrons prompts de la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique et de la fission spontanée du ^{252}Cf , en MeV, calculée par FIFRELIN, pour différents paramètres de densité de niveaux asymptotiques \tilde{a} du modèle d'Ignatyuk, ainsi que pour le cas $a = A/(11 \text{ MeV})$. Tous les résultats prennent en compte la section efficace inverse calculée avec le potentiel optique de Köning-Delaroche. Les énergies moyennes obtenues sont comparées à l'énergie moyenne d'une maxwellienne de paramètre $T = 1.32 \text{ MeV}$ pour l' ^{235}U et $T = 1.42 \text{ MeV}$ pour le ^{252}Cf . L'incertitude sur l'énergie moyenne du spectre est de l'ordre de 0.5 à 1 keV.

Si la recherche d'un nouveau jeu de cinq paramètres d'entrée n'a pas abouti à une amélioration du spectre, bien que celui-ci soit sensible notamment au paramètre de rapport maximal de température des fragments, la recherche d'une nouvelle paramétrisation pour le paramètre de densité de niveaux est légèrement plus concluante. Dans le cas de la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique, le fait de remplacer le paramètre de densité de niveaux asymptotique du CGCM par $\tilde{a} = A/(11 \text{ MeV})$ nous permet d'avoir une bien meilleure représentation du spectre entre 400 keV et 4 MeV, tout en prenant en compte la dépendance en énergie de la section efficace inverse. L'énergie moyenne des neutrons prompts est également mieux calculée. Cependant, dans les ailes du spectre, $\tilde{a} = A/(11 \text{ MeV})$ ne permet plus du tout d'être représentatif des mesures. Dans le cas du spectre de la fission spontanée du ^{252}Cf , aucune paramétrisation du paramètre de densité de niveau n'a donné de résultat concluant.

Pour conclure sur ce chapitre dédié à la modélisation du spectre, trois types de modèles ont été présentés. Les modèles simples basés sur l'observation, comme la maxwellienne et le modèle de Watt, qui permettent une représentation approximative du spectre. Cependant, ils ne sont pas prédictifs, car la valeur de leurs paramètres doit être déduite des mesures existantes. Si ces modèles permettent une approximation du spectre pour les systèmes fissionnants bien connus, comme la fission thermique de l' ^{235}U ou du ^{239}Pu ou encore la fission spontanée du ^{252}Cf , ils s'avèrent peu fiables pour les fissions pour lesquelles les mesures manquent. De plus, ils ne permettent pas de déduire d'information sur la physique de la fission à partir du spectre.

Nous avons également présenté le modèle de Madland-Nix, basé sur la théorie de Weisskopf, qui vise à décrire le spectre des neutrons émis par les fragments totalement accélérés. Ce modèle s'appuie, au prix de certaines hypothèses, sur des considérations statistiques relatives à l'émission des neutrons par les fragments, en tenant compte de leur distribution en température. Ses paramètres visent à représenter des fragments « moyens », et sont déduits de valeurs expérimentales. En ce sens, le modèle tend à être prédictif. Cependant, il ne permet pas un bon accord avec les données sans un réajustement de ses paramètres.

Enfin, nous avons présenté la calcul du spectre par le code FIFRELIN, qui simule la désexcitation des fragments de fission. Ce modèle est basé sur la technique du Monte-Carlo, qui permet de s’affranchir de l’approche par fragment moyen, et est donc en principe le calcul le plus prédictif. Cependant, en raison de la méconnaissance de certaines propriétés des fragments sur lesquelles s’appuie le code, FIFRELIN ne permet pas pour le moment d’avoir une bonne représentation du PFNS. Nous avons présenté l’effet de l’ajout de la section efficace inverse dans le modèle de Weisskopf : celle-ci ne permet pas d’améliorer le spectre, bien que la modélisation soit plus juste. Nous avons vu que certaines paramétrisations du paramètre de densité de niveaux permettent d’améliorer le spectre lorsque l’on considère la dépendance en énergie de la section efficace inverse. C’est le cas notamment pour le spectre de la fission de l’ ^{235}U induite par neutron thermique, lorsque l’on considère le paramètre de densité de niveau du modèle d’Ignatyuk avec un paramètre asymptotique égal à $A/(11 \text{ MeV})$. Cependant, l’écart avec les mesures reste important. Quel que soit le mode de désexcitation des fragments, couplé (Hauser-Feshbach) ou non-couplé (Weisskopf), d’autres voies d’amélioration sont possibles en plus de ce qui a été testé dans ce travail :

- meilleure modélisation du moment d’inertie des noyaux,
- potentiel optique plus adapté pour le calcul de la section efficace inverse (mode non-couplé) ou pour le calcul des coefficients de transmission (mode couplé),
- meilleure description de la répartition de l’énergie d’excitation entre les fragments à la scission,
- meilleure connaissance de la distribution en spin des fragments primaires.

Un intérêt important des modèles analytiques pour l’évaluation, outre le fait qu’ils nécessitent des développements moins lourds que les modèles Monte-Carlo, réside dans le calcul des sensibilités. En effet, lorsque l’on peut obtenir les dérivées analytiques du spectre à ses paramètres, il est simple d’appréhender la variation du spectre en fonction de ceux-ci, de les ajuster, ou de propager leurs incertitudes afin d’obtenir les incertitudes du spectre. Ceci est également possible, en théorie, avec les modèles probabilistes ; en pratique, leur temps de calcul ne rend pas toujours possible le calcul des sensibilités. L’objet du prochain chapitre est de présenter les techniques d’ajustement de ces modèles et les méthode de calcul d’une matrice de covariance réaliste associée.

Chapitre 3

Calcul du spectre et de sa matrice de covariance

Dans ce chapitre, on présentera des calculs du spectre des neutrons prompts de fission, et de la matrice de covariance associée, réalisés à l'aide du code CONRAD [2], développé au CEA Cadarache. Dans les évaluations internationales de données nucléaires les plus récentes, comme ENDF/B-VII.1 [14], JENDL-4.0 [64] et JEFF-3.2 [53], on trouve peu de données concernant les covariances du spectre, c'est-à-dire concernant le degré de confiance que l'on peut accorder à ces évaluations. Il est par ailleurs impossible de propager les incertitudes sur le spectre à d'autres grandeurs qui dépendent du spectre lorsqu'on n'a pas de données concernant les covariances. Les bibliothèques ENDF/B-VII.1 et JENDL-4.0 fournissent les matrices de covariances pour le spectre à plusieurs énergies incidentes (voir annexe B sur le format des évaluations), uniquement pour les principaux isotopes : ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu . Dans la bibliothèque JEFF-3.2, version sortie en mars 2014, il n'y a pas de données concernant les covariances des spectres. Nous proposons ici une méthodologie afin d'évaluer les covariances du spectre, dans le cadre de modèles analytiques simples, comme ceux vu dans le chapitre 2. L'annexe A rappelle les notions statistiques nécessaires pour comprendre et utiliser les matrices de covariances des données nucléaires.

Dans un premier temps, on verra quelques caractéristiques de la matrice de corrélation d'un spectre. On parlera ensuite de l'ajustement des paramètres de modèle. Le traitement des différentes sources d'incertitude sera abordé ensuite. En effet, on verra que la propagation des incertitudes systématiques dans l'ajustement n'est pas satisfaisant. C'est pourquoi on utilisera la marginalisation pour propager ces incertitudes. Pour montrer la nécessité de cette technique, on montrera trois calculs : un premier dans lequel on ne propagera que les incertitudes statistiques, un deuxième dans lequel on propagera les incertitudes statistiques et systématiques durant l'ajustement, et un troisième dans lequel on utilisera la marginalisation pour la propagation des incertitudes systématiques. On comparera les effets de la prise en compte des incertitudes de normalisation et d'efficacité de détection. On parlera de l'effet de l'ajout de mesures dans le calcul d'ajustement. Enfin, on présentera les résultats pour la fission de ^{235}U et du ^{239}Pu induite par neutron thermique, et on les comparera aux évaluations internationales.

3.1 Effet de la contrainte de normalisation sur la matrice de corrélation d'un spectre

Avant de parler du calcul de la matrice de covariance du spectre, il faut mentionner que la contrainte de normalisation du spectre introduit une contrainte sur sa matrice de corrélation. Considérons un modèle de n paramètres notés \vec{x} qui calcule un spectre $\chi(E, \vec{x})$, de façon à ce que le spectre soit toujours normalisé quelle que soit la valeur des paramètres :

$$\int_0^\infty \chi(E, \vec{x}) dE = 1 \quad \forall \vec{x} \quad (3.1)$$

Lorsque les paramètres \vec{x} changent, seule la forme du spectre est modifiée, il n'y a pas d'incertitude sur l'intégrale du spectre. Ceci implique la *zero-sum rule* : la somme de chaque ligne (et donc de chaque colonne) de la matrice de covariance doit être nulle, si cette matrice de covariance couvre tout le domaine en énergie. Nous allons voir l'effet de la contrainte de normalisation, plus spécifiquement sur la matrice de corrélation du spectre.

La définition générale pour la corrélation $\text{corr}(\chi_i, \chi_j)$ du spectre aux énergies E_i et E_j , avec $\chi_{i,j} \equiv \chi(E_{i,j})$, s'écrit (voir équations A.5 et A.18) :

$$\text{corr}(\chi_i, \chi_j) = \frac{\sum_k \sum_l \text{cov}(x_k, x_l) \cdot \frac{\partial \chi_i}{\partial x_k} \cdot \frac{\partial \chi_j}{\partial x_l}}{\sqrt{\sum_k \sum_l \text{cov}(x_k, x_l) \cdot \frac{\partial \chi_i}{\partial x_k} \cdot \frac{\partial \chi_i}{\partial x_l}} \cdot \sqrt{\sum_{k'} \sum_{l'} \text{cov}(x_{k'}, x_{l'}) \cdot \frac{\partial \chi_j}{\partial x_{k'}} \cdot \frac{\partial \chi_j}{\partial x_{l'}}}} \quad (3.2)$$

Cas du spectre maxwellien

Dans le cas du spectre maxwellien (équation 2.7), où l'on a un seul paramètre T , l'équation 3.2 devient :

$$\text{corr}(\chi_i, \chi_j) = \frac{\frac{\partial \chi_i}{\partial T} \cdot \frac{\partial \chi_j}{\partial T}}{\left| \frac{\partial \chi_i}{\partial T} \right| \cdot \left| \frac{\partial \chi_j}{\partial T} \right|} \quad (3.3)$$

Or on a pour la maxwellienne :

$$\frac{\partial \chi_i}{\partial T} = \frac{\chi_i}{T^2} \left(E_i - \frac{3}{2}T \right) = \frac{\chi_i}{T^2} (E_i - \langle E \rangle) \quad (3.4)$$

car pour le spectre maxwellien $\langle E \rangle = \frac{3}{2}T$. On a donc :

$$\text{corr}(\chi_i, \chi_j) = \begin{cases} 1 & \text{si } (E_i - \langle E \rangle)(E_j - \langle E \rangle) > 0 \\ -1 & \text{si } (E_i - \langle E \rangle)(E_j - \langle E \rangle) < 0 \end{cases} \quad (3.5)$$

La matrice de corrélation d'un spectre maxwellien a toujours une forme composée de deux domaines en énergie distincts : les énergies inférieures à $\langle E \rangle$, et celles supérieures à $\langle E \rangle$. Lorsque deux énergies sont « de part et d'autre » de $(3/2)T$, le spectre à ces deux énergies est totalement anti-corrélé. Tandis qu'entre deux énergies « du même côté » de $(3/2)T$, le spectre est totalement corrélé. La figure 3.1 montre une représentation graphique de la matrice de corrélation du spectre maxwellien, dans le cas où $T = 1.32$ MeV, soit $\langle E \rangle = 1.98$ MeV.

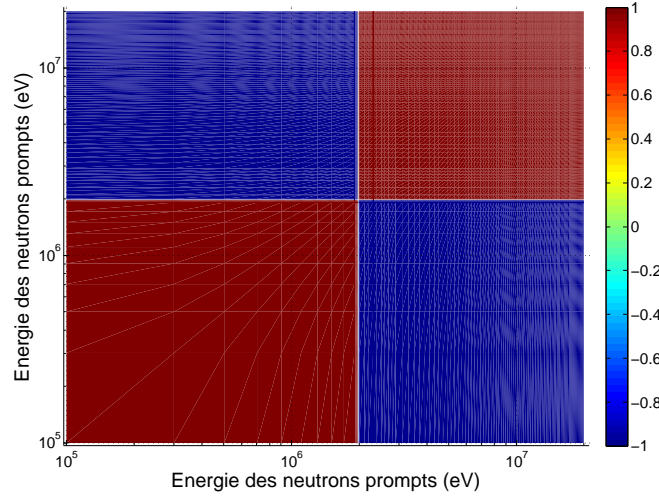


FIGURE 3.1 – Matrice de corrélation d’un spectre maxwellien de paramètre $T = 1.32$ MeV. L’énergie de séparation des deux domaines de corrélation correspond à l’énergie moyenne $\langle E \rangle = \frac{3}{2}T = 1.98$ MeV.

Cette forme caractéristique de la matrice de corrélation découle directement du fait que l’on a imposé une constante de normalisation dépendante des paramètres (ici, de T), afin de garder la norme du spectre égale à 1 pour toutes les valeurs possibles des paramètres. En effet, la dérivée 3.4 ne s’exprime de cette manière qu’en raison de la constante $2/\sqrt{\pi T^3}$ qui précède le « facteur de forme » maxwellien. Intuitivement, on peut imaginer qu’afin de garder la norme du spectre égale à 1, sous l’effet d’un changement de forme, le spectre augmentera (resp. diminuera) pour toutes les énergies inférieures à l’énergie moyenne, et diminuera (resp. augmentera) pour toutes les énergies supérieures à l’énergie moyenne. L’énergie moyenne peut être vue comme une énergie « pivot » pour la variation de la forme du spectre.

Cas des modèles à plusieurs paramètres

Dans le cas du spectre maxwellien, on a vu que la matrice de corrélation dépend uniquement de la valeur du paramètre T ; elle ne dépend pas de la matrice de covariance des paramètres. Dans le cas des spectres de Watt et de Madland-Nix, qui ont plusieurs paramètres de modèle, la corrélation entre le spectre à deux énergies différentes peut prendre d’autres valeurs que 1 et -1 ; la matrice de corrélation du spectre dépend des variances des paramètres ainsi que de leurs corrélations. Cependant, on observe généralement aussi cette forme à deux domaines, sans toutefois avoir de singularité à l’énergie « pivot », mais avec une transition plus douce entre les deux domaines. Cependant, lorsque l’on devine une énergie de séparation entre deux domaines, elle ne correspond pas à l’énergie moyenne du spectre. La figure 3.2 montre les matrices de corrélation typiques d’un modèle à plusieurs paramètres, pour un spectre de Watt et pour un spectre de Madland-Nix.

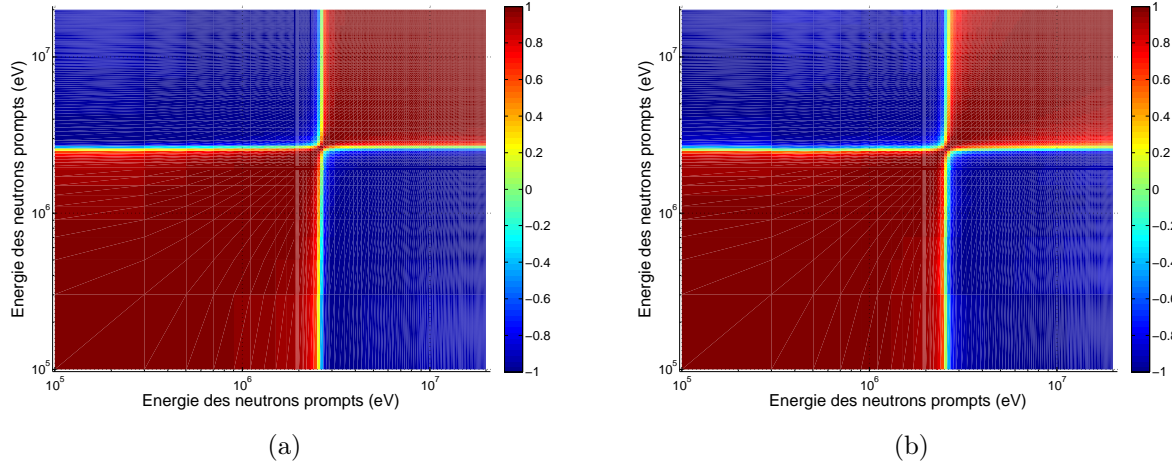


FIGURE 3.2 – Matrices de corrélation typiques d’un spectre normalisé pour un modèle à plusieurs paramètres : spectre de Watt (a), et spectre de Madland-Nix (b). L’énergie moyenne du spectre de Watt est de 1.983 MeV, celui du spectre de Madland-Nix de 1.979 MeV. On voit que l’énergie de séparation des deux domaines ne correspond pas à l’énergie moyenne.

3.2 Ajustement bayésien des paramètres de modèle

Afin de produire une évaluation du spectre et de ses covariances, on a utilisé le code CONRAD pour ajuster les paramètres des modèles maxwellien, de Watt et de Madland-Nix. Le code CONRAD, développé par le CEA Cadarache au LEPH depuis 2005 en C++, est un outil dédié à l’évaluation des données nucléaires. A ce titre il combine les quatre éléments nécessaires, qu’on développera par la suite :

1. **La théorie**, à travers une bibliothèque de classes contenant les modèles utilisés pour décrire les données nucléaires. Certains ingrédients de modèles, comme les modèles de densités de niveaux, se trouvent dans une bibliothèque distincte nommée COOL, pour « Cadarache Object Oriented Library ». Ceci permet d’avoir une bibliothèque commune aux codes se basant sur la physique nucléaire, notamment CONRAD et FIFRELIN.
2. **Les modèles expérimentaux**, qui permettent de rendre compte des différentes étapes d’analyse et de réduction de données.
3. **Un moteur d’ajustement** basé sur l’inférence bayésienne, afin de procéder à des ajustements de paramètres de modèle sur les données mesurées. C’est cette partie du code qui fait le lien entre les parties modèle et expérience.
4. **Le calcul des covariances**, qui intervient dans chacune des parties précédemment mentionnées.

A chaque modèle théorique correspond un jeu de paramètres, que l’utilisateur doit soit contraindre (dans ce cas, il s’agit d’un simple calcul théorique), soit demander d’ajuster pour reproduire des données expérimentales. Si l’on prend le cas simple d’un spectre de Watt, $\mathcal{W}(E)$ de l’équation 2.9, les paramètres de modèle sont T_W , la « température de Watt », et E_f l’énergie cinétique par nucléon d’un fragment moyen.

Dans CONRAD, les paramètres sont définis par les caractéristiques suivantes :

- leur nom, afin d’être identifiés de la même manière par l’utilisateur et par le code,
- leur valeur centrale x_0 ,
- leur incertitude dx ,
- leur corrélation éventuelle avec chacun des autres paramètres.

Dans le cadre d’un ajustement par le méthode GLS (moindres carrés généralisés), la densité de probabilité $p(x)$ associée à la valeur des paramètres est supposée gaussienne, de valeur centrale x_0 et de largeur dx . Il existe depuis peu dans CONRAD la possibilité de se passer de cette hypothèse via un algorithme Monte-Carlo (méthode UMC pour *Unified Monte-Carlo*) [60]. Cette méthode n’a cependant pas été utilisée dans le cadre de cette thèse.

CONRAD peut donc servir, en dehors d’un ajustement, à un calcul purement théorique. Par exemple en renseignant la valeur et l’incertitude sur T_W et E_f ainsi que leur corrélation, on peut calculer le spectre $\mathcal{W}(E)$ associé, ainsi que sa matrice de covariance due aux covariances des paramètres. Dans le cadre de cette étude, on utilise CONRAD dans le cadre d’un ajustement.

3.2.1 Algorithme d’ajustement et modèle expérimental

Supposons que l’on dispose d’une mesure \vec{y} d’une grandeur dépendante de l’énergie, ainsi que de la matrice de covariance expérimentale M^{exp} telle que $M_{i,j}^{\text{exp}} = \text{cov}(y_i, y_j)$. Supposons que l’on dispose aussi d’un modèle $\vec{t}(\vec{x})$ pour cette grandeur. L’ajustement permet de trouver l’ensemble de paramètres \vec{x} qui permet le meilleur accord entre \vec{y} et $\vec{t}(\vec{x})$. L’algorithme de minimisation selon le théorème de Bayes est développé dans les références [1] et [24]. On part d’une information *a priori* sur les paramètres de modèle et leur matrice de covariance, que l’on note $\vec{x}^{(0)}$ et $M_x^{(0)}$. Lorsque le problème est non-linéaire, on cherche les meilleurs paramètres par itération. A la n -ième itération on a :

$$\begin{cases} M_x^{(n)} = \left[\left(M_x^{(0)} \right)^{-1} + \left(G_x^{(n-1)} \right)^\top \cdot (M^{\text{exp}})^{-1} \cdot G_x^{(n-1)} \right]^{-1} \\ \vec{x}^{(n)} = \vec{x}^{(0)} + M_x^{(n)} \cdot \left(G_x^{(n-1)} \right)^\top \cdot (M^{\text{exp}})^{-1} \cdot \left[\vec{y} - \vec{t}(\vec{x}^{(n-1)}) - G_x^{(n-1)} \cdot (\vec{x}^{(0)} - \vec{x}^{(n-1)}) \right] \end{cases} \quad (3.6)$$

où

$$\left(G_x^{(n)} \right)^{i,j} = \frac{\partial t_i(\vec{x}^{(n)})}{\partial x_j^{(n)}} \quad (3.7)$$

Cela revient à minimiser la « fonction coût », aussi appelée χ^2 d’après une notation générale en statistique :

$$\begin{aligned} \chi_{(n)}^2 &= \left[\vec{y} - \vec{t}(\vec{x}^{(n)}) \right]^\top \cdot (M^{\text{exp}})^{-1} \cdot \left[\vec{y} - \vec{t}(\vec{x}^{(n)}) \right] \\ &\quad + \left(\vec{x}^{(n)} - \vec{x}^{(0)} \right)^\top \cdot (M_x^{(0)})^{-1} \cdot \left(\vec{x}^{(n)} - \vec{x}^{(0)} \right) \end{aligned} \quad (3.8)$$

On considère que la convergence est atteinte lorsque l’écart relatif du χ^2 entre deux itérations est inférieur à une certaine valeur fixée par l’utilisateur, généralement autour de 10^{-3} .

Afin de pouvoir calculer une fonction coût, \vec{y} et $\vec{t}(\vec{x})$ doivent être rigoureusement comparables. Or, lorsque l’utilisateur renseigne des valeurs expérimentales, il ne s’agit en général pas directement de l’observable. Dans l’exemple des spectres, on ne mesure pas le spectre

directement, mais un nombre de coups reçus par intervalle d'énergie de neutrons. Pour s'y comparer, il faut donc également modéliser la mesure, via un modèle expérimental. Le modèle expérimental permet de passer de l'observable d'intérêt, comme ici un spectre $\chi(E, \vec{x})$, à la quantité mesurée, ici un nombre de coups, noté $C(E)$:

$$C(E) = f\left(\chi(E, \vec{x}), \vec{\theta}\right) \quad (3.9)$$

où f est le modèle expérimental, et $\vec{\theta}$ sont ses paramètres. $C(E)$ sont les valeurs que l'on mesureraient, si le spectre correspondait au spectre théorique de paramètres \vec{x} . Dans l'ajustement, les valeurs théoriques \vec{x} sont les valeurs du modèle expérimental. Le modèle expérimental est lui aussi fonction de paramètres, notés θ , qui ne sont plus des paramètres de modèles mais des paramètres expérimentaux. On les appelle les « paramètres de nuisance », car ils n'ont pas d'intérêt pour l'utilisateur d'une évaluation, mais sont à prendre en compte par l'évaluateur. Dans le cas des mesures de spectres de neutrons prompts de fission, on est dans un premier temps passé par le cadre originellement implémenté pour les sections efficaces dans CONRAD :

$$C(E) = N \cdot \chi(E) + B \quad (3.10)$$

où $\vec{\theta} = \{N, B\}$, avec N la normalisation et B le bruit de fond. Dans cette étude, on s'intéresse uniquement à l'ajustement des paramètres de modèle. Les paramètres du modèle expérimental ne sont pas ajustés. En revanche, l'incertitude sur ces paramètres devra être propagée comme incertitude systématique, comme on le verra plus loin. Au cours de la thèse, on a raffiné le modèle expérimental en y ajoutant l'efficacité de détection dépendante de l'énergie, $\epsilon(E)$, dans les paramètres de nuisance. Le nouveau modèle expérimental est donc :

$$C(E) = N \cdot \epsilon(E) \cdot \chi(E) + B \quad (3.11)$$

3.2.2 Modèles et choix des paramètres *a priori*

Les trois modèles étudiés ici sont le spectre maxwellien, le spectre de Watt et le spectre de Madland-Nix, qui sont présentés dans le chapitre 2. Le code CONRAD a été originellement développé pour l'évaluation des sections efficaces ; ses capacités ont été étendues aux spectres dans le cadre de cette thèse. Pour le paramètre maxwellien T , le choix de l'*a priori* est le paramètre maxwellien « de référence » dans la littérature pour le système fissionnant que l'on considère. Pour la fission de ^{235}U induite par neutron thermique, on prendra $T = 1.32$ MeV ; pour celle du ^{239}Pu induite par neutron thermique, on prendra $T = 1.38$ MeV. Pour la fission spontanée du ^{252}Cf , on choisira $T = 1.42$ MeV. Pour les spectres de Watt et de Madland-Nix, on utilise les systématiques proposées par Madland et Nix dans la référence [47]. Les paramètres de Madland-Nix : T_m , E_f^L et E_f^H sont calculés comme exposé dans la section 2.1.2. Le spectre étant peu sensible au rapport des multiplicités des fragments r , on a fixé la contribution de chacun des deux fragments à 1/2. Les paramètres du spectre de Watt sont choisis de façon à ce que l'énergie moyenne du spectre de Watt soit la même que celle du spectre de Madland-Nix, ce qui donne $E_f = (E_f^L + E_f^H) / 2$, et $T_W = (8/9) T_m$. Les paramètres *a priori* seront toujours choisis selon ces prescriptions. Pour ce qui est de la matrice de covariance *a priori* des paramètres, le choix qui est fait est de laisser 10% d'incertitude pour les paramètres apparentés à des températures nucléaires, paramètre maxwellien inclus, et 7% d'incertitude sur les paramètres d'énergie cinétique des fragments par nucléon, comme préconisé dans la référence [23].

Dans le cadre des modèles utilisés, les paramètres présentent des corrélations. Par exemple, les énergies cinétiques par nucléon des fragments léger et lourd, E_f^L et E_f^H , doivent logiquement être anti-corrélés. Cependant, dans les calculs qui seront présentés dans ce chapitre, on ne considèrera pas de corrélation entre les différents paramètres de modèle. En effet, lorsque l'on effectue le calcul en imposant par exemple que la somme des énergies cinétiques des deux fragments soit constante, on obtient des paramètres ajustés très loin de leurs valeurs *a priori*. Les valeurs ajustées semblent aberrantes par rapport à la signification que leur donne le modèle. En effet, les modèles que l'on utilise ne sont pas parfaits : même avec les paramètres optimaux, ils ne peuvent reproduire la réalité que dans une certaine mesure. Lors de l'ajustement, les paramètres libres doivent donc permettre de reproduire au mieux des données qui ne sont pas reproductibles via ce modèle. On ne peut alors plus attribuer aux paramètres *a posteriori* la signification physique prévue par le modèle. Devant ce constat, il a été décidé dans la suite de ce travail de ne pas imposer de contrainte de corrélations entre les paramètres. L'ajustement nous permet seulement de reproduire au mieux les données. Il ne nous permet pas de déduire d'information sur la physique, comme la température maximale des fragments par exemple, à partir des paramètres ajustés.

D'autre part, on considère dans ce chapitre le modèle de Madland-Nix dans sa forme la plus simple, c'est-à-dire celle de l'équation 2.22. On considère uniquement la fragmentation la plus probable et une section efficace inverse constante. Dans de nombreux autres travaux, notamment ceux de la référence [63], un modèle de Madland-Nix plus élaboré a été ajusté pour reproduire des données expérimentales. Dans le cadre de cette thèse, on ne cherche pas à préserver la physique du modèle, et le modèle basique à trois paramètres suffit à reproduire les données. Cependant, la méthodologie que l'on va présenter pour produire la matrice de covariance associée au spectre pourra être appliquée à ces modèles.

Pour présenter l'effet de l'ajustement sur la valeur des paramètres, et donc sur la forme du spectre, on procède à un ajustement d'un spectre de Madland-Nix sur les mesures de spectre pour la fission de l' ^{235}U induite par neutrons thermiques. Les mesures en question sont présentées au chapitre 1. On ne propagera ici que les incertitudes statistiques, c'est-à-dire provenant du caractère aléatoire du comptage. La matrice de covariance provenant des incertitudes statistiques est diagonale (pas de termes de corrélation). On appelle ce calcul le calcul 1. On verra dans la section suivante comment propager les incertitudes systématiques de l'expérience. Pour propager les incertitudes statistiques sans les incertitudes systématiques, il faut disposer de barres d'erreurs des mesures dans lesquelles les composantes systématiques (incertitude sur les paramètres de nuisance) doivent être absentes autant que possible. D'après les systématiques que l'on a exposées précédemment, on a les paramètres *a priori* :

$$a \text{ priori} : \begin{cases} T_m^{(0)} &= 1.01 \pm 0.10 \text{ MeV} \\ E_f^{L(0)} &= 1.06 \pm 0.07 \text{ MeV} \\ E_f^{H(0)} &= 0.50 \pm 0.04 \text{ MeV} \end{cases} \quad (3.12)$$

Après l'ajustement, on obtient les valeurs *a posteriori* pour \vec{x} et ses covariances :

$$\text{Calcul 1} : \begin{cases} T_m = 0.889 \pm 0.003 \text{ MeV} & , \text{ corr}(T_m, E_f^L) = -0.986 \\ E_f^L = 1.310 \pm 0.008 \text{ MeV} & , \text{ corr}(T_m, E_f^H) = -0.484 \\ E_f^H = 0.275 \pm 0.001 \text{ MeV} & , \text{ corr}(E_f^L, E_f^H) = +0.383 \end{cases} \quad (3.13)$$

Ce qui donne une énergie moyenne d'environ 1.98 MeV, soit la même énergie moyenne que la maxwellienne de paramètre $T = 1.32 \text{ MeV}$. Les spectres déduits des paramètres *a priori*

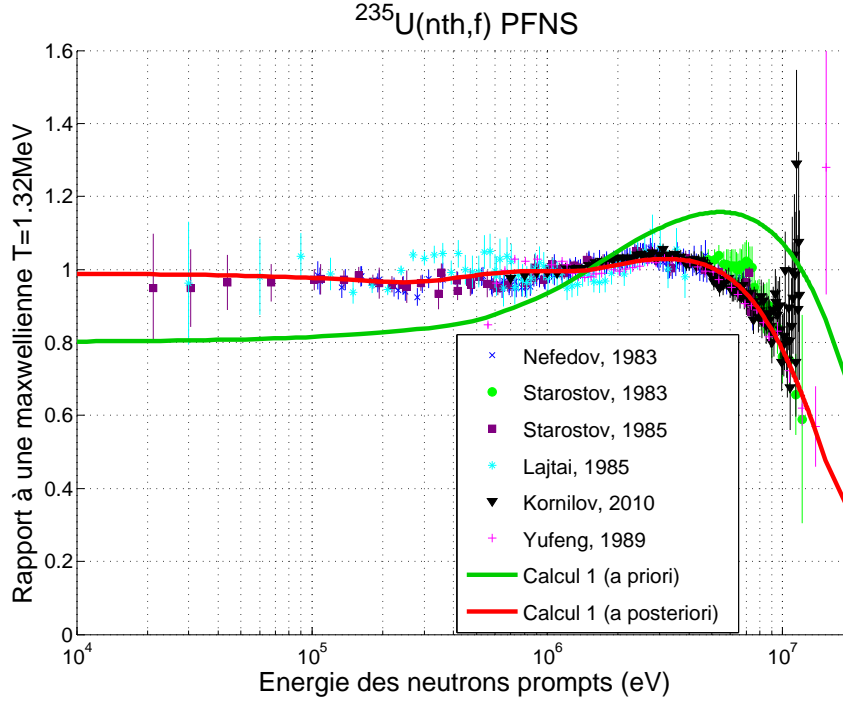


FIGURE 3.3 – Spectre de Madland-Nix ajusté, rapporté à une maxwellienne, en tenant compte uniquement des incertitudes statistiques. Le spectre *a priori* (resp. *a posteriori*) provient des paramètres de l'équation 3.12 (resp. de l'équation 3.13).

et *a posteriori* sont représentés sur la figure 3.3. On peut observer que les paramètres *a priori* donnent un spectre qui ne permet pas une reproduction satisfaisante des données ; les paramètres *a posteriori* apportent une nette amélioration du fit. Les valeurs des paramètres se sont beaucoup éloignées de leurs valeurs *a priori* : plus d' 1σ pour T_m , presque 4σ pour E_f^L et plus de 5σ pour E_f^H . Dans le cadre du modèle de Madland-Nix, cela aboutit à un spectre moins dur dans le centre de masse, à un fragment léger plus rapide dans le référentiel du laboratoire, et à un fragment lourd plus lent dans le laboratoire. Cependant, comme on l'a dit, si ces paramètres sont ceux qui permettent le meilleur accord calcul-expérience, il est difficile de leur attribuer une réelle signification physique après un ajustement.

On peut noter que l'ajustement a considérablement réduit l'incertitude sur les paramètres. Ceci vient du fait que l'on a propagé uniquement les incertitudes statistiques. On va voir dans la section suivante comment prendre en compte la composante systématique de l'incertitude expérimentale.

3.3 Traitement des différentes sources d'incertitude expérimentale

On distingue deux types d'incertitudes expérimentales à propager, que l'on appellera « incertitude statistique » et « incertitude systématique ».

Incertitude statistique Ce premier type d'incertitude est lié au caractère aléatoire du comptage. On peut considérer que la probabilité de compter C neutrons dans le i -ème groupe d'énergie, suit une loi de Poisson :

$$p_i(C) = \frac{(\lambda_i)^C}{C!} e^{-\lambda_i} \quad (3.14)$$

L'espérance mathématique de cette distribution est $\mathbb{E}(C) = \lambda_i$ et son écart-type $\sigma_C = \sqrt{\lambda_i}$. En pratique, on considère que la valeur observée C_i correspond à l'espérance mathématique de la distribution, c'est-à-dire $\lambda_i = C_i$. L'incertitude statistique sur la mesure dans le i -ème groupe est donc de l'ordre de $\sqrt{C_i}$. Cette incertitude concerne chaque groupe indépendamment des autres, elle n'induit pas de corrélation entre les groupes. La matrice de covariance « statistique » est alors diagonale :

$$M^{\text{stat.}} = \begin{pmatrix} C_1 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & C_2 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \cdots & C_n \end{pmatrix} \quad (3.15)$$

Cette incertitude est représentable en deux dimensions par de simples barres d'erreurs. La connaissance de cette incertitude statistique suppose que l'on connaisse le nombre absolu de neutrons qui ont été comptés par l'expérimentateur dans chaque groupe. Or souvent les données sont disponibles soit en unité arbitraire, soit rapportées au nombre de fissions détectées, soit déjà normalisées à une certaine grandeur. Le seul moyen alors de connaître l'incertitude statistique dans chaque groupe, est qu'elle soit fournie explicitement par l'expérimentateur. Là encore ce n'est pas toujours le cas, car il arrive souvent que l'incertitude fournie par les expérimentateurs soit déjà le résultat de la combinaison de plusieurs sources d'incertitude.

Incertitude systématique Ce second type désigne l'incertitude sur les paramètres qui interviennent dans le modèle expérimental : les paramètres de nuisance. Pour le PFNS, il s'agit de la normalisation, du bruit de fond et de l'efficacité de détection. On considère M_θ la matrice de covariance de tous les paramètres de nuisance, avec $M_\theta^{i,j} = \text{cov}(\theta_i, \theta_j)$. L'observable à modéliser est $C(E)$ de l'équation 3.11. On note G_θ la matrice des dérivées aux paramètres de nuisance, soit $G_\theta^{i,j} = (\partial C(E_i)/\partial \theta_j)$. Dans le cas de la normalisation par exemple, on a :

$$\frac{\partial C(E)}{\partial N} = \frac{C(E) - B}{N} \quad (3.16)$$

La matrice de covariance systématique $M^{\text{syst.}}$ de $C(E)$ est :

$$M^{\text{syst.}} = G_\theta M_\theta G_\theta^\top \quad (3.17)$$

La matrice de covariance expérimentale totale s'écrit $M^{\text{exp.}} = M^{\text{stat.}} + M^{\text{syst.}}$. On va montrer dans cette section que propager cette matrice expérimentale durant l'ajustement, selon l'équation 3.6, ne permet pas une propagation satisfaisante des incertitudes systématiques. Pour mieux prendre en compte ce type d'incertitude, on utilisera des techniques de marginalisation qui seront décrites ultérieurement. Afin de montrer l'insuffisance de la propagation de la matrice complète durant l'ajustement et l'apport de la marginalisation, on comparera trois calculs :

- **Le calcul 1**, qui vient d’être décrit : effectué en ne propageant que les incertitudes statistiques pendant l’ajustement (le spectre qui en résulte a été présenté sur la figure 3.3) ;
- **Le calcul 2**, qui sera fait en propageant la matrice de covariance expérimentale complète pendant l’ajustement ;
- **Le calcul 3**, qui sera fait en ne propageant que les incertitudes statistiques durant l’ajustement, puis en marginalisant les incertitudes systématiques.

Les trois calculs seront faits en ajustant un spectre de Madland-Nix sur des mesures de spectres pour la fission de l’ ^{235}U induite par neutron thermique. Pour les calculs 2 et 3, on prendra comme incertitude systématique une incertitude de normalisation.

3.3.1 Insuffisances de la propagation simultanée des incertitudes statistiques et systématiques

L’équation 3.6 prévoit une matrice de covariance expérimentale complète. On peut donc en théorie propager les incertitudes statistiques et systématiques simultanément dans l’ajustement. Pour montrer l’effet de l’ajout des incertitudes systématiques, on décide ici de propager l’incertitude systématique sur la normalisation des données. Les expérimentateurs considèrent généralement une incertitude de normalisation autour de quelques pour-cent. Une première estimation de l’incertitude sur la normalisation est de comparer la norme N des mesures obtenue en intégrant les valeurs du spectre à $+1\sigma$ avec celle obtenue en intégrant les valeurs à -1σ , ce qui donne une incertitude de normalisation ΔN allant de 1% à 4% dans le cas de la fission thermique de l’ ^{235}U . On procède à un ajustement d’un spectre de Madland-Nix sur des mesures de spectres pour la fission de l’ ^{235}U induite par neutron thermique. D’abord en ne propageant que les incertitudes statistiques, c’est le calcul 1, puis en ajoutant l’incertitude systématique de normalisation à la matrice de covariance expérimentale dans l’ajustement, ce qu’on nommera le calcul 2. Le calcul 1 a été fait dans la section 3.2. Les paramètres qui en résultent avec leurs covariances sont donnés dans l’équation 3.13. On a vu que les incertitudes obtenues sur les paramètres ajustés sont très faibles. Après le calcul 2, on obtient un nouveau jeu de paramètres, avec de nouvelles covariances :

$$\text{Calcul 2 : } \begin{cases} T_m = 0.890 \pm 0.004 \text{ MeV} & , \text{ corr}(T_m, E_f^L) = -0.985 \\ E_f^L = 1.300 \pm 0.009 \text{ MeV} & , \text{ corr}(T_m, E_f^H) = -0.215 \\ E_f^H = 0.296 \pm 0.002 \text{ MeV} & , \text{ corr}(E_f^L, E_f^H) = +0.095 \end{cases} \quad (3.18)$$

La valeur des paramètres ajustés change légèrement entre les calculs 1 et 2. La figure 3.4 montre le spectre issu du calcul 2, le spectre issu du calcul 1 est également montré pour comparaison ; la variation n’est pas substantielle. En revanche, on s’attend à ce que les covariances du spectre dans le cas du calcul 2 aboutissent à de plus grandes incertitudes sur le spectre. La figure 3.5 montre l’incertitude relative du spectre, dans le cas des calculs 1 et 2. On observe que l’incertitude est quasiment inchangée, et reste extrêmement faible comparée aux incertitudes expérimentales. Etant donné que nous utilisons des modèles imparfaits, il n’est pas cohérent d’obtenir des incertitudes plus faibles d’un ordre de grandeur comparé aux incertitudes expérimentales. Ceci nous permet de dire que l’ajustement ne prend pas en compte les incertitudes systématiques de manière satisfaisante. Pour remédier à ce problème, on utilise des techniques dites de « marginalisation » qui sont implémentées dans CONRAD, et qui sont très utilisées dans le cadre de l’évaluation des sections efficaces [1, 24].

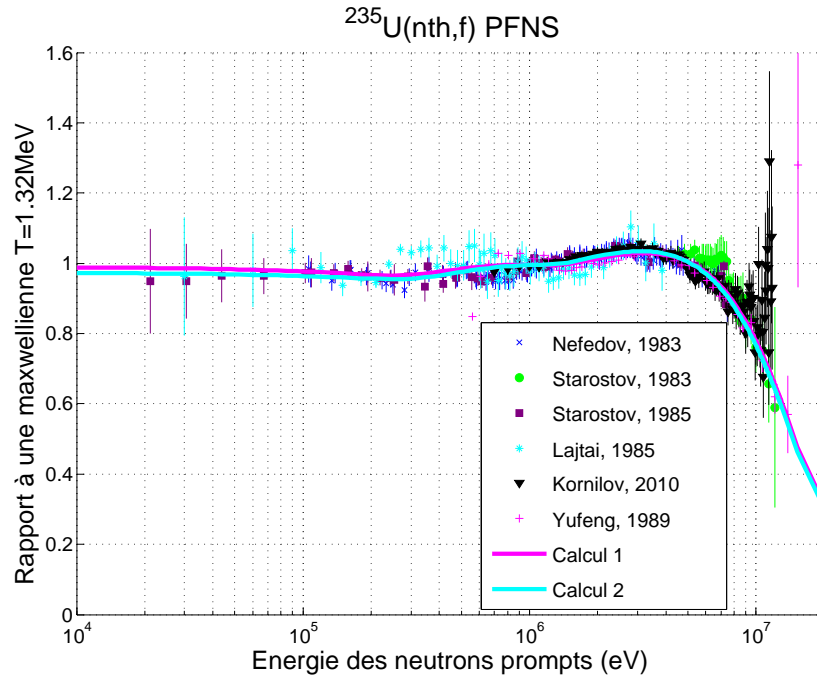


FIGURE 3.4 – Spectres issus du calcul 1 (paramètres de l'équation 3.13) et du calcul 2 (paramètres de l'équation 3.18), comparés aux mesures.

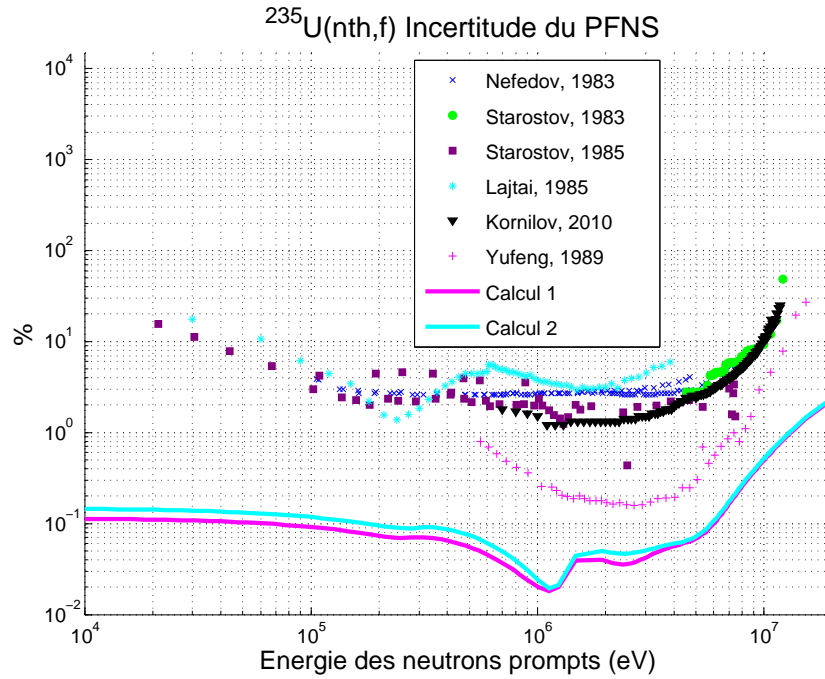


FIGURE 3.5 – Incertitudes du spectre issu du calcul 1 (paramètres de l'équation 3.13) et du calcul 2 (paramètres de l'équation 3.18), comparées aux incertitudes expérimentales.

3.3.2 Une solution appropriée : la marginalisation

La marginalisation consiste à ne pas tenir compte de l'incertitude des paramètres de nuisance dans l'ajustement, et à propager cette incertitude une fois les paramètres *a posteriori* déterminés. Prenons l'exemple d'une observable $\chi(E, \vec{x})$ de l'énergie et de n paramètres de modèle notés \vec{x} . Dans l'ajustement, on considère une grandeur expérimentale $C(E, \vec{x}, \vec{\theta})$ telle que :

$$C(E, \vec{x}, \vec{\theta}) = f(\chi(E, \vec{x}), \vec{\theta}) \quad (3.19)$$

où f désigne le modèle expérimental, qui dépend de m paramètres de nuisance notés θ . Après un ajustement, on obtient les paramètres de modèles ajustés \vec{x} ainsi que leur matrice de covariance M_x . Notons \vec{p} l'ensemble des paramètres dont $C(E, \vec{x}, \vec{\theta})$ dépend :

$$\vec{p} = \{x_1, x_2, \dots, x_n, \theta_1, \theta_2, \dots, \theta_m\} \quad (3.20)$$

La matrice de covariance M_C de $C(E, \vec{x}, \vec{\theta})$ s'exprime comme :

$$M_C = G_p M_p G_p^\top \quad (3.21)$$

où $G_p^{i,j} = \partial C_i / \partial p_j$, et :

$$M_p = \begin{pmatrix} (M_x) & (0) \\ (0) & (M_\theta) \end{pmatrix} \quad (3.22)$$

De cette façon, la matrice M_C rend compte des covariances des paramètres de nuisance sans passer par l'ajustement. Cependant, la matrice de covariance M_χ de $\chi(E, \vec{x})$ ne dépend plus seulement des paramètres et de la forme du modèle, mais également des paramètres de nuisance et de leurs covariances. Autrement dit, un utilisateur qui voudrait connaître M_χ à partir de notre évaluation, ne pourra pas se contenter de connaître les modèles et de récupérer notre évaluation de \vec{x} et M_x , il faut aussi qu'il connaisse les paramètres de nuisance et le modèle expérimental, ce qui n'est pas une bonne solution. C'est en ce sens que les paramètres θ sont dits « de nuisance » : ils influencent le résultat final, sans être d'intérêt pour les utilisateurs des modèles.

On fait alors l'hypothèse que l'on peut trouver une nouvelle matrice de covariance pour les paramètres de modèles : M_x^{marg} , telle que :

$$M_C = G_{C,x} M_x^{\text{marg}} G_{C,x}^\top \quad (3.23)$$

où $G_{C,x}^{i,j} = \partial C_i / \partial x_j$, et donc telle que :

$$G_{C,x} M_x^{\text{marg}} G_{C,x}^\top = G_p M_p G_p^\top \quad (3.24)$$

Si l'on peut trouver cette matrice M_x^{marg} , alors la matrice de covariance de χ peut être déduite des seules informations sur le modèle :

$$M_\chi = G_x M_x^{\text{marg}} G_x^\top \quad (3.25)$$

où $G_x^{i,j} = \partial \chi_i / \partial x_j$. La matrice de covariance marginalisée des paramètres de modèle, M_x^{marg} , s'écrit [1] :

$$M_x^{\text{marg}} = M_x^{\text{post}} + (G_{C,x}^\top \cdot G_{C,x})^{-1} \cdot G_{C,x}^\top \cdot G_{C,\theta} \cdot M_\theta \cdot G_{C,\theta}^\top \cdot G_{C,x} \cdot (G_{C,x}^\top \cdot G_{C,x})^{-1} \quad (3.26)$$

La marginalisation que l'on vient de décrire est dite « analytique », la référence [25] lui est consacrée. Elle n'est possible que si la matrice $(G_{C,x}^\top \cdot G_{C,x})$ est inversible. Il existe également dans CONRAD une marginalisation par Monte-Carlo, qui consiste à échantillonner les paramètres de nuisance et à répéter l'ajustement pour chaque tirage, comme développé dans la référence [16]. Dans nos calculs de PFNS, la marginalisation analytique est possible, c'est donc celle que l'on utilise.

Afin de montrer l'intérêt de propager les incertitudes systématiques par la marginalisation plutôt que dans l'ajustement, reprenons l'exemple précédent du spectre de Madland-Nix ajusté sur les mesures pour la fission de ^{235}U induite par neutron thermique. En utilisant toujours les mêmes paramètres *a priori* (équation 3.12), on propage seulement les incertitudes statistiques pendant l'ajustement, comme dans le calcul 1. L'incertitude de normalisation est ensuite marginalisée. On appelle ce calcul le calcul 3. L'ajustement est le même que dans le cas du calcul 1, la valeur des paramètres de modèle, et donc la forme du PFNS, ne change pas. La seule modification par rapport au calcul 1 est la matrice de covariance des paramètres de modèles. On obtient :

$$\text{Calcul 3 : } \begin{cases} T_m = 0.889 \pm 0.040 \text{ MeV} & , \text{ corr}(T_m, E_f^L) = -0.805 \\ E_f^L = 1.310 \pm 0.047 \text{ MeV} & , \text{ corr}(T_m, E_f^H) = -0.918 \\ E_f^H = 0.275 \pm 0.020 \text{ MeV} & , \text{ corr}(E_f^L, E_f^H) = +0.623 \end{cases} \quad (3.27)$$

La figure 3.6 représente l'incertitude du spectre issue du calcul 3. L'incertitude des spectres issus des calculs 1 (propagation des incertitudes statistiques uniquement) et du calcul 2 (propagation des incertitudes statistiques et systématiques simultanément pendant l'ajustement) y est rappelée pour comparaison. On observe que la marginalisation fait une vraie différence entre la prise en compte ou non de la partie systématique des incertitudes. La nouvelle incertitude est du même ordre de grandeur que celles des mesures, ce qui est plus cohérent avec le fait que l'on utilise des modèles simples.

L'effet de la marginalisation est également manifeste si l'on considère la matrice de corrélation du spectre. La figure 3.7 montre cette matrice dans le cas des calculs 1, 2 et 3. Lorsque l'incertitude systématique n'est pas prise en compte (calcul 1), ou qu'elle est prise en compte pendant l'ajustement (calcul 2), la matrice de corrélation du spectre présente une forme assez éloignée de la forme en deux domaines qu'on a présentée en début de chapitre. On peut observer que la prise en compte de l'incertitude de normalisation par la marginalisation (calcul 3), ramène la matrice de corrélation du PFNS à sa forme caractéristique en deux domaines d'énergie.

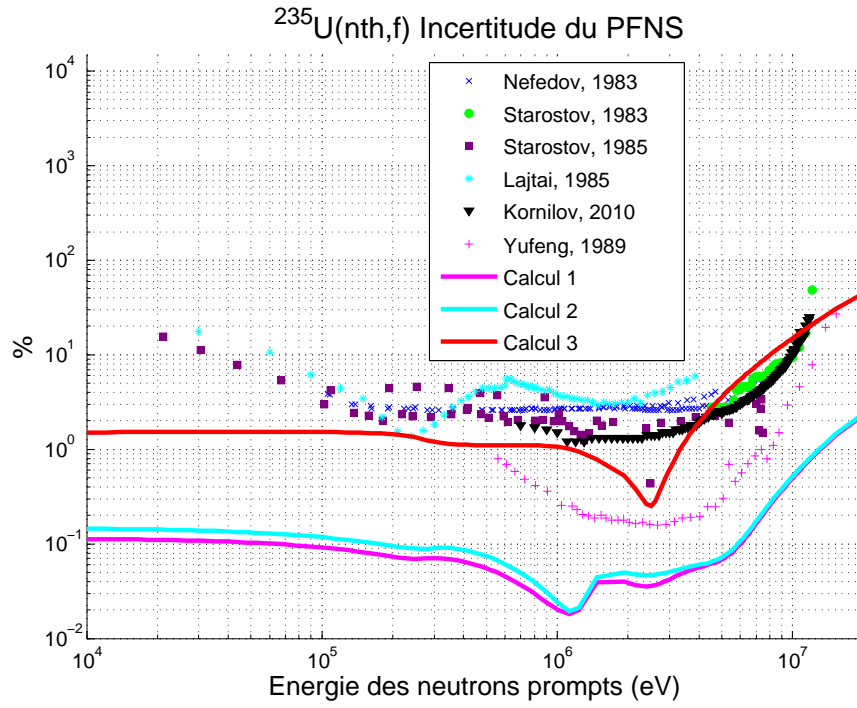


FIGURE 3.6 – Incertitudes du spectre issu du calcul 1 (paramètres de l'équation 3.13), du calcul 2 (paramètres de l'équation 3.18) et du calcul 3 (paramètres de l'équation 3.27), comparées aux incertitudes expérimentales.

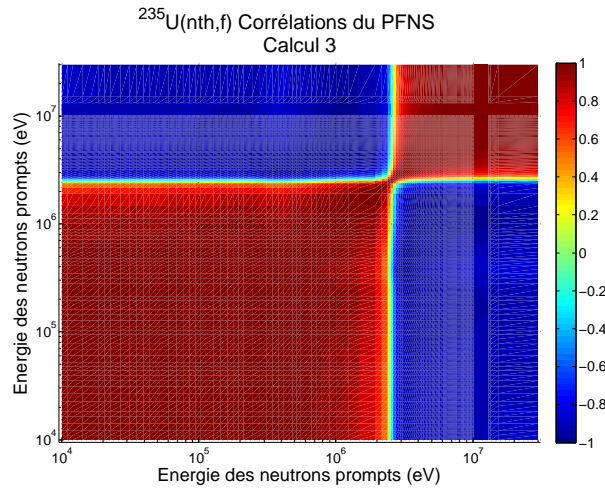
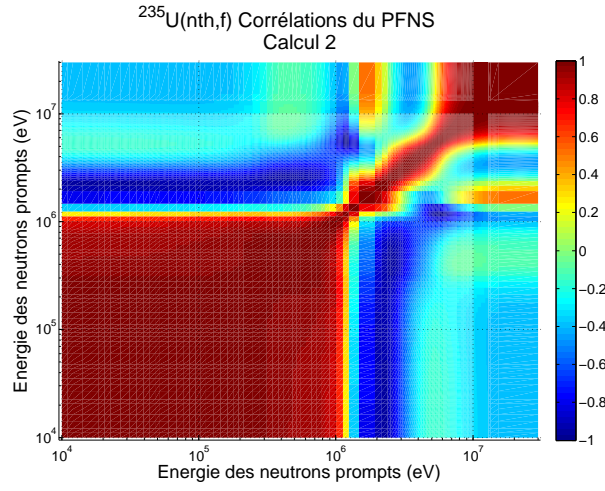
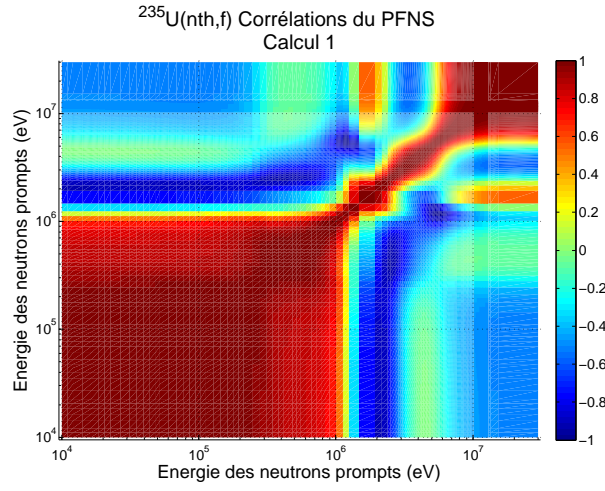


FIGURE 3.7 – Matrice de corrélation du spectre issu des calculs 1, 2 et 3 (paramètres des équations respectivement 3.13, 3.18 et 3.27)

3.4 Effets comparés des incertitudes dues à la normalisation et à l'efficacité de détection dépendante de l'énergie

A travers nos trois exemples (calculs 1, 2 et 3) pour illustrer l'apport de la marginalisation, dans lesquels on a propagé l'incertitude de normalisation, on a pu voir l'effet de cette incertitude sur le bandeau d'incertitude et la corrélation du spectre. En plus d'augmenter les incertitudes du spectre final, elle ramène la matrice de corrélation à la forme typique d'une quantité normalisée (voir figures 3.1 et 3.2).

Notons qu'il peut paraître aberrant, à première vue, de considérer une incertitude de normalisation pour une quantité qui est par définition normalisée à un. En effet, seule la forme du spectre peut varier. Cependant, comme on l'a vu au chapitre 1, si la normalisation du spectre sur un domaine en énergie infini ne souffre aucune incertitude, on ne mesure jamais le spectre sur le domaine entier. L'incertitude sur la normalisation du spectre mesuré dans un domaine fini en énergie, se répercute sur la forme du spectre. En ce sens, il est légitime de considérer l'incertitude sur la normalisation expérimentale ayant comme répercussion une incertitude sur la forme du spectre théorique.

Pour ce qui est de l'incertitude sur l'efficacité de détection, le formalisme de la marginalisation n'accepte pas de dépendance en énergie pour un paramètre de nuisance. Pour marginaliser l'incertitude sur $\epsilon(E)$, il faut donc que l'on passe par un modèle de l'efficacité $g(E, \vec{\theta}_\epsilon)$, dépendant lui-même de paramètres θ_ϵ . Ce sont ces θ_ϵ qui seront marginalisés. Le modèle expérimental s'écrit alors :

$$C(E) = N \cdot g(E, \vec{\theta}_\epsilon) \cdot \chi(E) + B \quad (3.28)$$

La dérivée du modèle expérimental au k -ième paramètre de nuisance de l'efficacité $\theta_{\epsilon,k}$ s'écrit :

$$\frac{\partial C(E)}{\partial \theta_{\epsilon,k}} = \frac{\partial C(E)}{\partial g(E, \vec{\theta}_\epsilon)} \cdot \frac{\partial g(E, \vec{\theta}_\epsilon)}{\partial \theta_{\epsilon,k}} = \frac{C(E) - B}{g(E, \vec{\theta}_\epsilon)} \cdot \frac{\partial g(E, \vec{\theta}_\epsilon)}{\partial \theta_{\epsilon,k}} \quad (3.29)$$

Les modèles d'efficacité ont pour unique vocation de donner une incertitude relative $\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon}(E)$ la plus proche possible de la valeur considérée par les expérimentateurs, qu'il s'agisse d'une mesure ou d'un calcul Monte Carlo. Cela implique bien sûr que l'on connaisse la forme de $\epsilon(E)$ ainsi que de son incertitude $\Delta \epsilon(E)$. Lorsque c'est le cas, dans un premier temps il faut trouver un modèle $g(E, \theta_\epsilon)$ qui reproduise $\epsilon(E)$ au mieux. Etant donnée la forme typique des courbes d'efficacité, une des fonctions adaptées est la fonction que l'on appellera « fonction pulse » $\mathcal{P}(E)$:

$$\mathcal{P}(E) = \begin{cases} \epsilon_0 & \text{pour } E \leq E_0 \\ \epsilon_0 + A (1 - e^{-(E-E_0)/t_1})^P e^{-(E-E_0)/t_2} & \text{pour } E > 0 \end{cases} \quad (3.30)$$

Ici on a $\vec{\theta}_\epsilon = \{\epsilon_0, A, t_1, t_2, P\}$. E_0 est un paramètre à fixer. Un ajustement nous permet de trouver les paramètres θ_ϵ qui reproduisent au mieux $\epsilon(E)$. Mais le plus important est que les $\Delta \theta_\epsilon$ reproduisent au mieux $\Delta \epsilon$. Pour ce faire, on considère la fonction « incertitude sur g » :

$$\Delta g(E, \theta_\epsilon, \Delta \theta_\epsilon) = \sum_k \left| \frac{\partial g}{\partial \theta_{\epsilon,k}} \right| \Delta \theta_{\epsilon,k} \quad (3.31)$$

qui est une estimation approchée de l'incertitude sur g due aux $\Delta\theta_\epsilon$. Les paramètres $\Delta\theta_\epsilon$ sont ajustés afin de minimiser l'écart entre $\Delta g(E)$ et $\Delta\epsilon(E)$. Ensuite, on marginalisera les paramètres $\theta_\epsilon \pm \Delta\theta_\epsilon$. Bien entendu, une propagation rigoureuse des incertitudes passe par la racine de la somme quadratique des incertitudes ; l'équation 3.31 est donc une incertitude « maximisée ». C'est cette incertitude maximisée qui nous a permis de trouver des incertitudes sur les paramètres θ_ϵ qui permettent une bonne reproduction de $\Delta\epsilon(E)$, comme on va le voir.

Parmi les mesures disponibles pour la fission induite par neutron thermique, la seule pour laquelle on dispose de mesures de l'efficacité [28] est celle de Kornilov *et al.*, faite avec des détecteurs organiques liquides. C'est la fonction « pulse » qui nous a permis de modéliser cette efficacité ainsi que son incertitude, via les paramètres :

$$\left\{ \begin{array}{l} E_0 = 0.5 \text{ MeV} \\ \epsilon_0 = 0.046 \pm 0.001 \\ A = 0.477 \\ t_1 = 0.540 \pm 0.014 \text{ MeV}^{-1} \\ t_2 = 8.287 \pm 0.543 \text{ MeV}^{-1} \\ P = 0.351 \pm 0.008 \end{array} \right. \quad (3.32)$$

L'efficacité mesurée par Kornilov *et al.*, ainsi que le modèle d'efficacité et son bandeau d'incertitude sont représentés sur la figure 3.8.

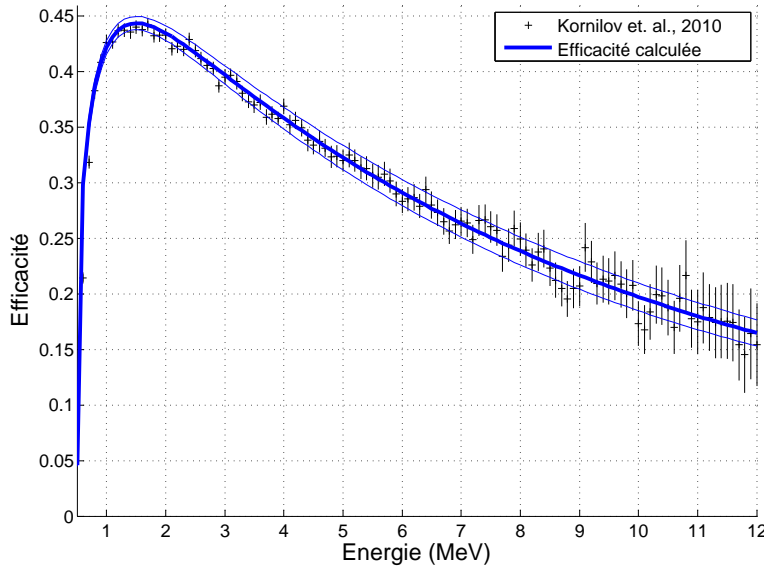


FIGURE 3.8 – Efficacité mesurée lors des expériences de l'IRMM pour un détecteur à scintillation organique liquide de type NE-213. Fit de l'efficacité avec la fonction pulse.

Afin de comparer les effets de ces deux types d'incertitude systématique : celle sur la normalisation, constante sur tout le domaine en énergie, et celle sur l'efficacité de détection, qui dépend de l'énergie, on décide de les propager séparément. On ajuste un spectre de Madland-Nix sur les mesures de Kornilov *et al.* pour la fission thermique de l' ^{235}U . Aucune

autre mesure ne sera prise en compte dans l'ajustement, afin que l'effet des incertitudes de norme et d'efficacité puissent être comparées. En effet, si les autres mesures étaient prises en compte, l'effet de l'incertitude sur l'efficacité de détection serait quelque peu « noyée » puisqu'on ne peut pas la prendre en compte pour toutes les mesures (données sur l'efficacité manquantes). Le spectre obtenu après l'ajustement est présenté sur la figure 3.9. Le spectre n'est pas impacté par les incertitudes systématiques, car elles sont propagées après l'ajustement. On ne remontrera donc pas le spectre après marginalisation des deux sources d'incertitude systématique.

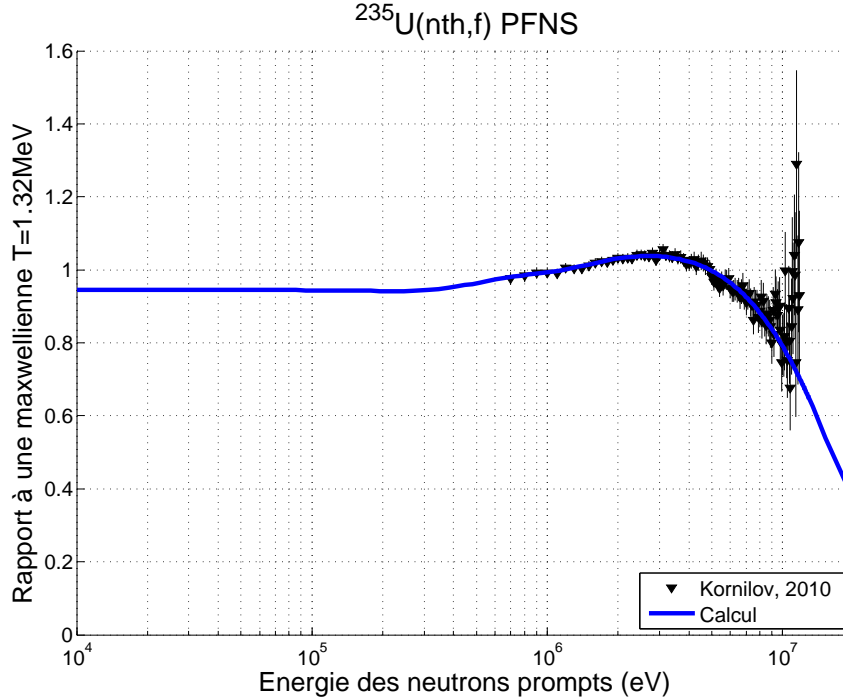


FIGURE 3.9 – Spectre de Madland-Nix ajusté sur les mesures de Kornilov *et al.* pour la fission thermique de l' ^{235}U .

Les incertitudes relatives de normalisation et d'efficacité sont représentées sur la figure 3.10. On peut observer que sur tout le domaine en énergie, l'incertitude sur l'efficacité est plus importante que celle sur la normalisation, estimée à 1%. On propage dans un premier calcul l'incertitude de normalisation expérimentale. Dans un deuxième calcul, on propage l'incertitude sur l'efficacité de détection (courbe bleue de la figure 3.10), sans propager celle sur la normalisation. L'incertitude du spectre résultant de ces deux sources d'incertitude est montré sur la figure 3.11. Elle y est comparée à l'incertitude obtenue sans incertitude systématique. A haute énergie, soit au-dessus de 4 à 5 MeV, l'incertitude du spectre devient similaire, que l'on ait propagé l'incertitude de normalisation ou d'efficacité. Pourtant, c'est dans ce domaine en énergie que la différence entre les incertitudes relatives de normalisation et d'efficacité est la plus élevée (voir figure 3.10). On voit aussi que la forme de l'incertitude relative du spectre en fonction de l'énergie diffère, suivant que l'on a considéré l'incertitude sur la norme ou sur l'efficacité de détection. Les structures dans l'incertitude relative du spectre en fonction de l'énergie sont à mettre en relation avec celles de la matrice de corrélation.

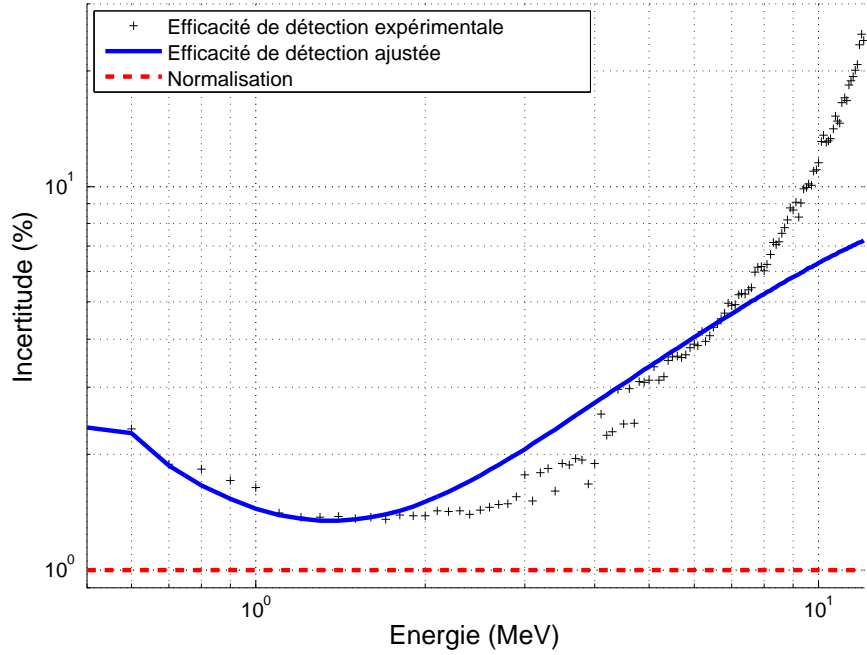


FIGURE 3.10 – Incertitudes relatives de normalisation et d’efficacité de détection, pour les mesures de Kornilov *et al.* pour la fission thermique de l’ ^{235}U . L’incertitude d’efficacité propagée dans le calcul est celle sur l’efficacité ajustée.

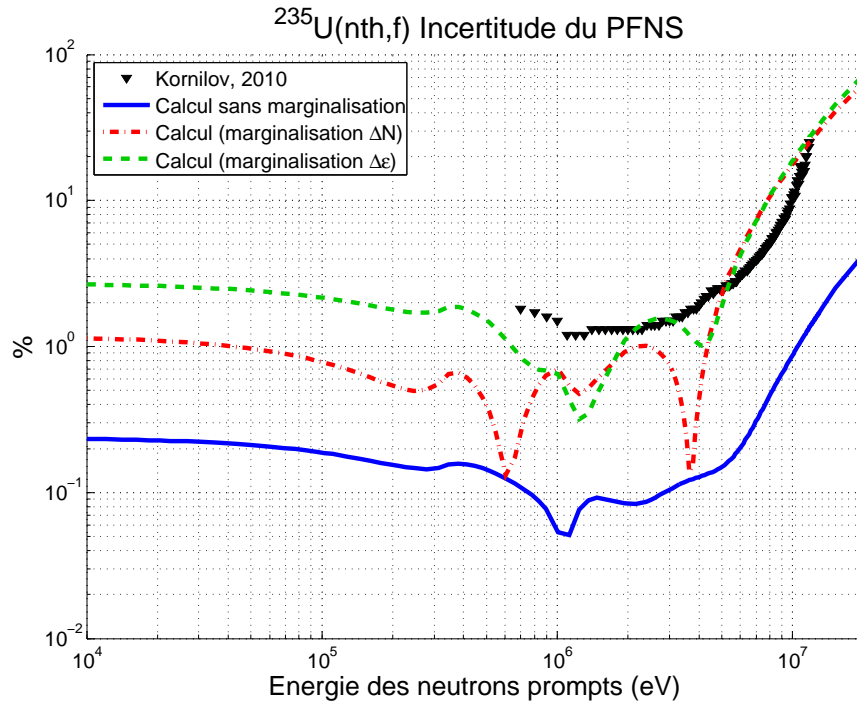


FIGURE 3.11 – Incertitude du spectre de Madland-Nix ajusté sur les mesures de Kornilov *et al.* pour la fission thermique de l’ ^{235}U , dans le cas sans incertitude systématique (courbe pleine), avec propagation de l’incertitude de normalisation (courbe rouge), et avec propagation de l’incertitude d’efficacité (traitillés verts).

La figure 3.12 montre la matrice de corrélation du spectre, dans le cas sans marginalisation, ainsi que dans le cas où on propage l'incertitude de norme et dans le cas où on propage celle sur l'efficacité. Dans le cas sans marginalisation, on observe les structures liées à l'ajustement ; c'est ce qu'on observe lorsque les incertitudes sont extrêmement sous-estimées, comme c'est le cas lorsqu'on ne passe pas par la marginalisation. En revanche, dans le cas avec marginalisation, de l'incertitude de norme ou d'efficacité, on observe une matrice à trois domaines de corrélation. Bien que la matrice de corrélation d'un spectre ait généralement une forme à deux domaines, ici, on n'a considéré qu'une seule mesure dans l'ajustement ; de plus, celle-ci ne couvre pas tout le domaine énergétique. C'est ce qui explique la présence de deux énergies « pivot » au lieu d'une seule. Dans le cas où l'on considère un grand nombre d'expériences, c'est bien deux domaines de corrélation que l'on peut observer sur la matrice de corrélation du spectre. Dans le cas où l'incertitude de normalisation est propagée, on observe une transition abrupte entre ces domaines. Dans le cas où on propage l'incertitude d'efficacité dépendante de l'énergie, la transition entre les domaines est plus douce. Ceci est à mettre en relation avec la forme de l'incertitude relative du spectre, qui est plus lisse dans le cas avec incertitude sur l'efficacité que dans le cas avec incertitude sur la normalisation (figure 3.11).

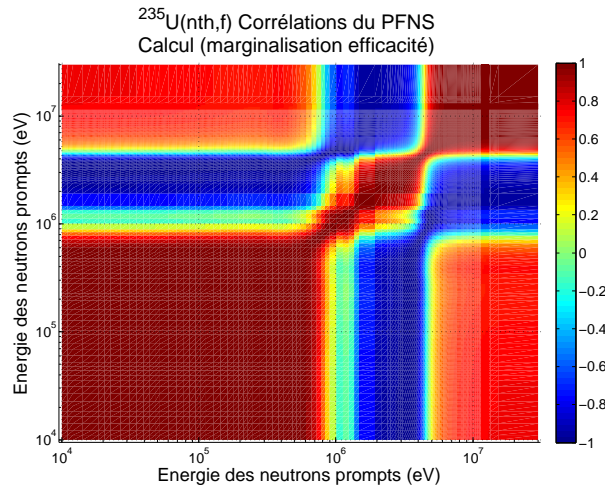
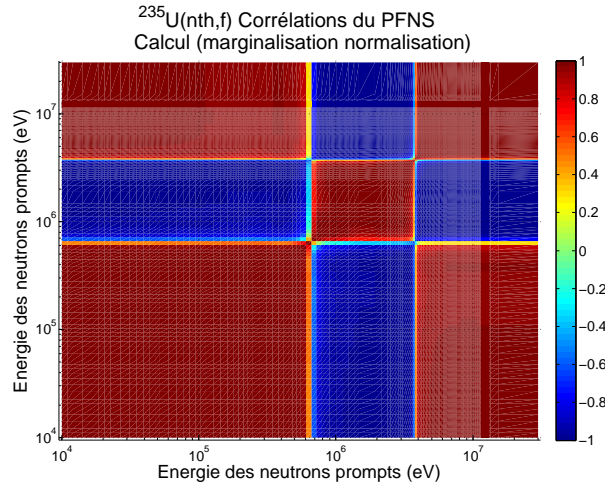
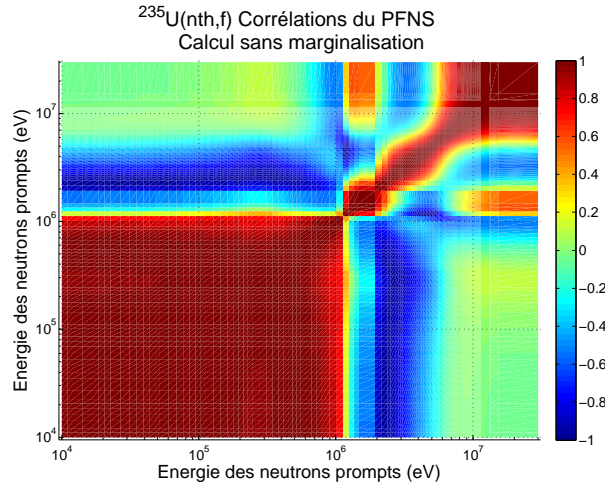


FIGURE 3.12 – Matrice de corrélation du spectre de Madland-Nix ajusté sur les mesures de Kornilov *et al.* pour la fission thermique de l' ^{235}U , dans le cas sans incertitude systématique (a), avec propagation de l'incertitude de normalisation (b), et avec propagation de l'incertitude d'efficacité (c).

3.5 Effet de l'ajout de données mesurées

On va montrer dans cette section l'importance, pour avoir un ajustement pertinent, de prendre en compte le plus de mesures possible. Au fur et à mesure que l'on inclut des mesures dans le calcul, la forme du spectre change, ainsi que son bandeau d'incertitude. Afin de montrer l'effet de l'ajout des différentes mesures, on a procédé à un ajustement toujours pour un spectre de Madland-Nix, en prenant en compte une à une des mesures pour la fission thermique de l' ^{235}U . Toutes les mesures de spectre présentées dans le chapitre 1 sont considérées, à l'exception de celle de Starostov *et al.* de 1981, qui présente des contradictions avec les autres mesures, notamment à basse énergie. Le spectre avec son bandeau d'incertitude résultant de chacun de ces calculs, est montré sur les figures 3.13 à 3.18.

On observe que l'ajout de données expérimentales influe de façon significative à la fois sur le spectre et sur son incertitude. C'est pourquoi il est important de prendre en compte le plus grand nombre possible de mesures dans le calcul, afin d'obtenir un spectre représentatif et une incertitude réaliste. De plus, afin de réduire le bandeau d'incertitude du spectre, il est important que les mesures couvrent tout le domaine énergétique des neutrons prompts de fission, soit environ entre 100 keV et 15 MeV.

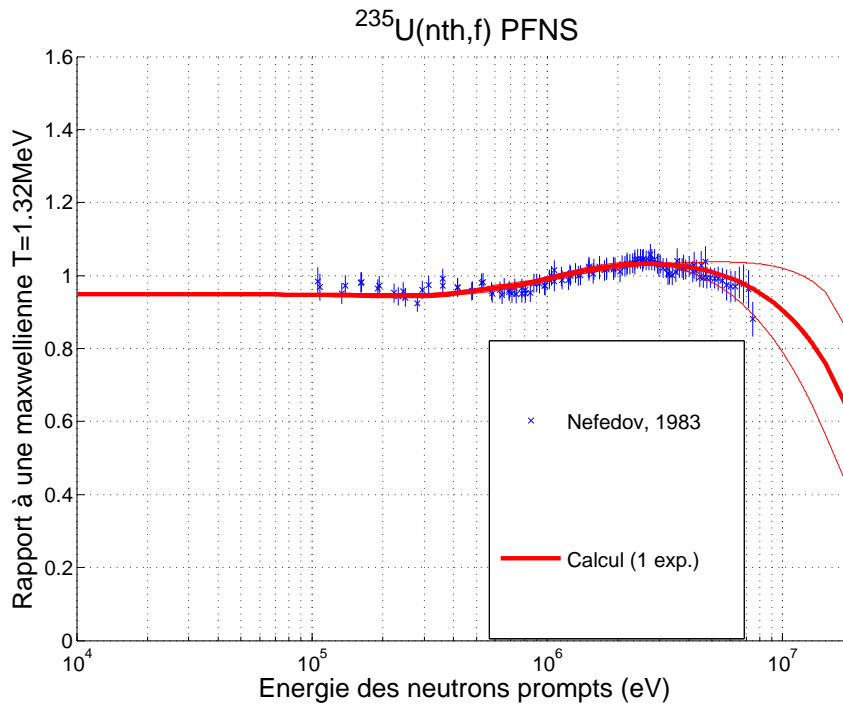


FIGURE 3.13 – Spectre ajusté, avec son bandeau d'incertitude à 1σ , sur une mesure pour le PFNS de l' ^{235}U thermique.

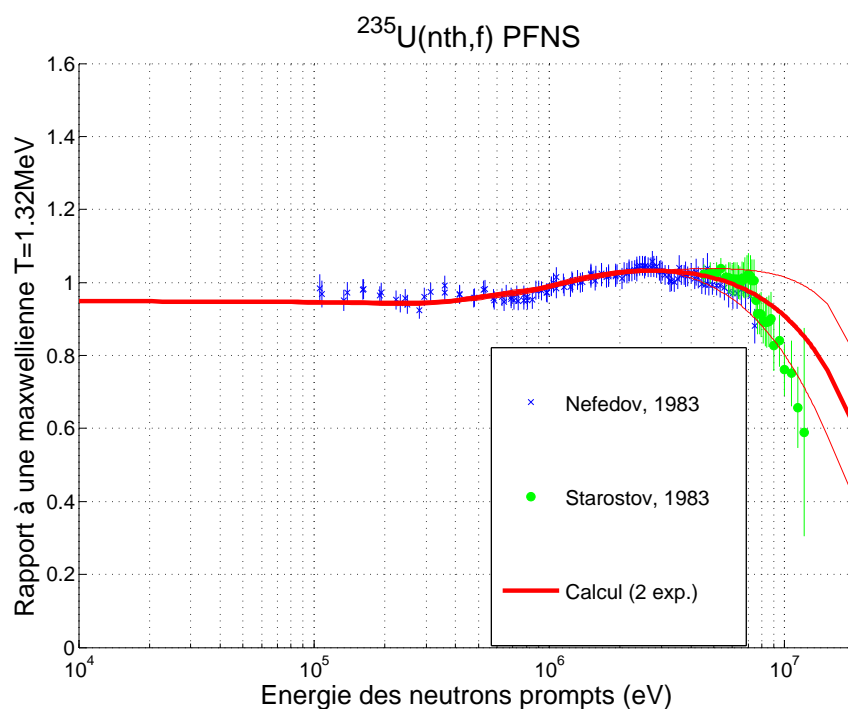


FIGURE 3.14 – Spectre ajusté, avec son bandeau d’incertitude à 1σ , sur deux mesures pour le PFNS de l’ ^{235}U thermique.

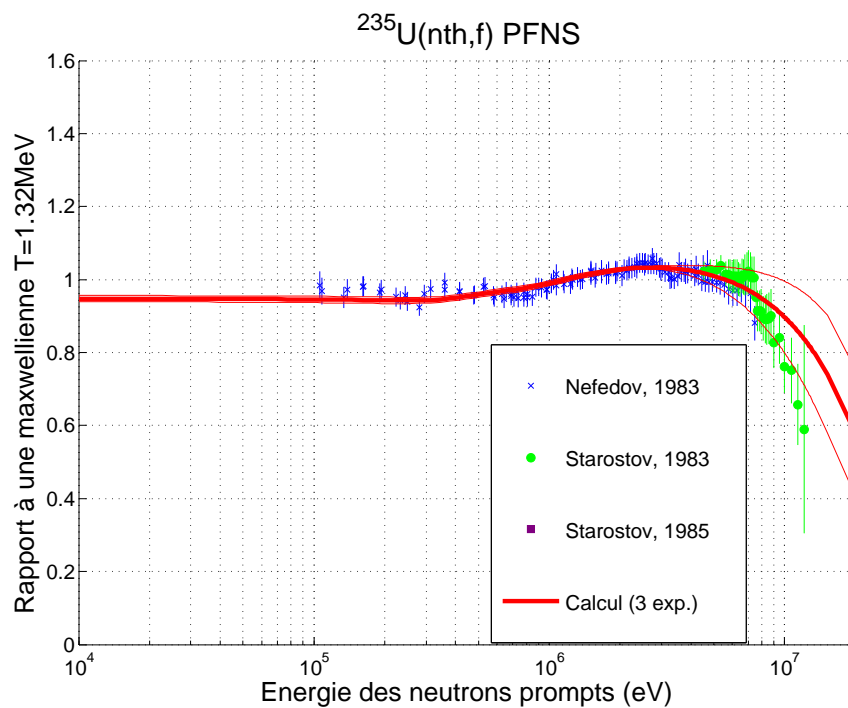


FIGURE 3.15 – Spectre ajusté, avec son bandeau d’incertitude à 1σ , sur trois mesures pour le PFNS de l’ ^{235}U thermique.

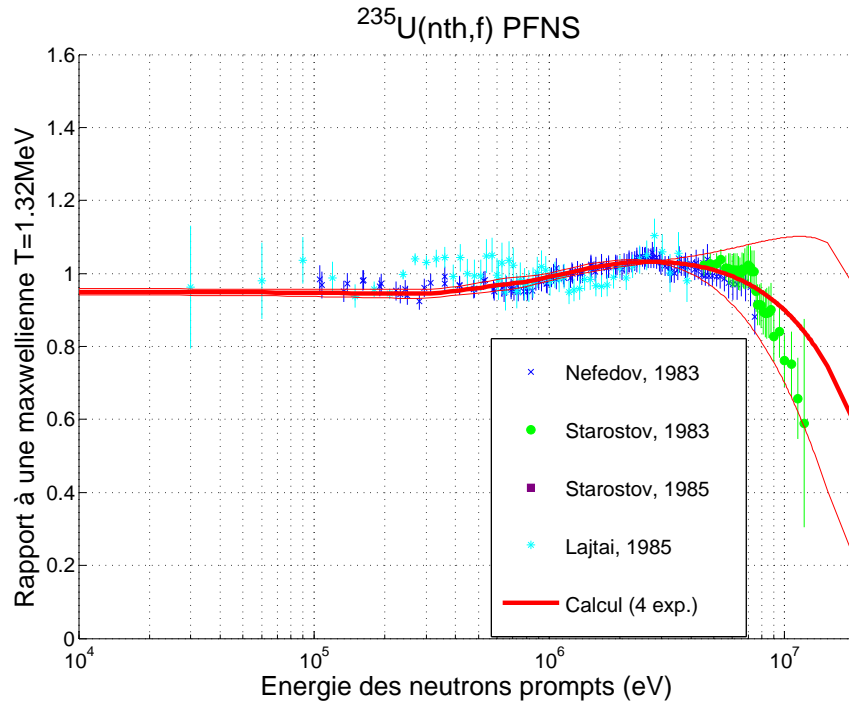


FIGURE 3.16 – Spectre ajusté, avec son bandeau d’incertitude à 1σ , sur quatre mesures pour le PFNS de l’ ^{235}U thermique.

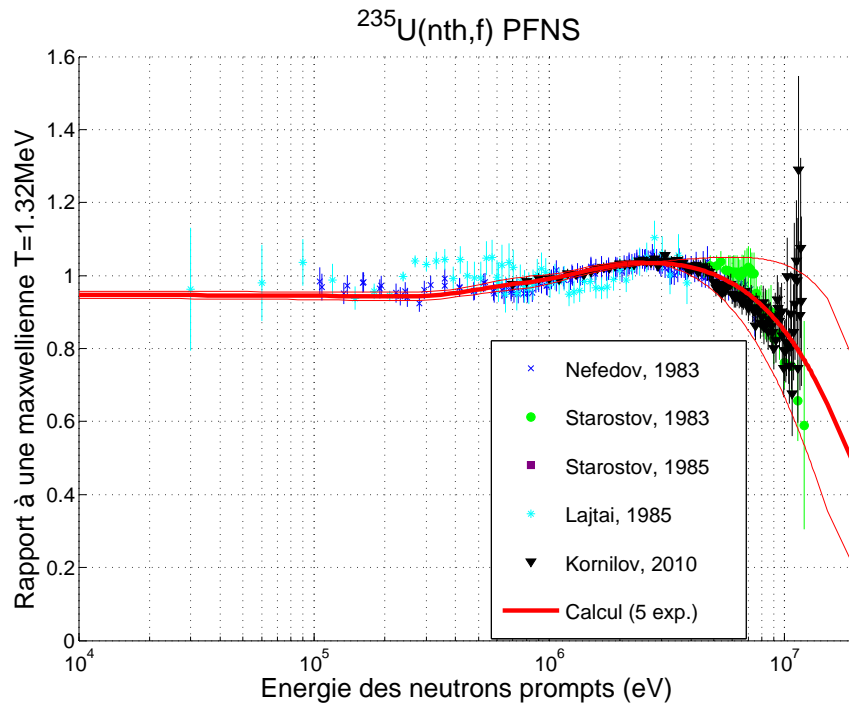


FIGURE 3.17 – Spectre ajusté, avec son bandeau d’incertitude à 1σ , sur cinq mesures pour le PFNS de l’ ^{235}U thermique.

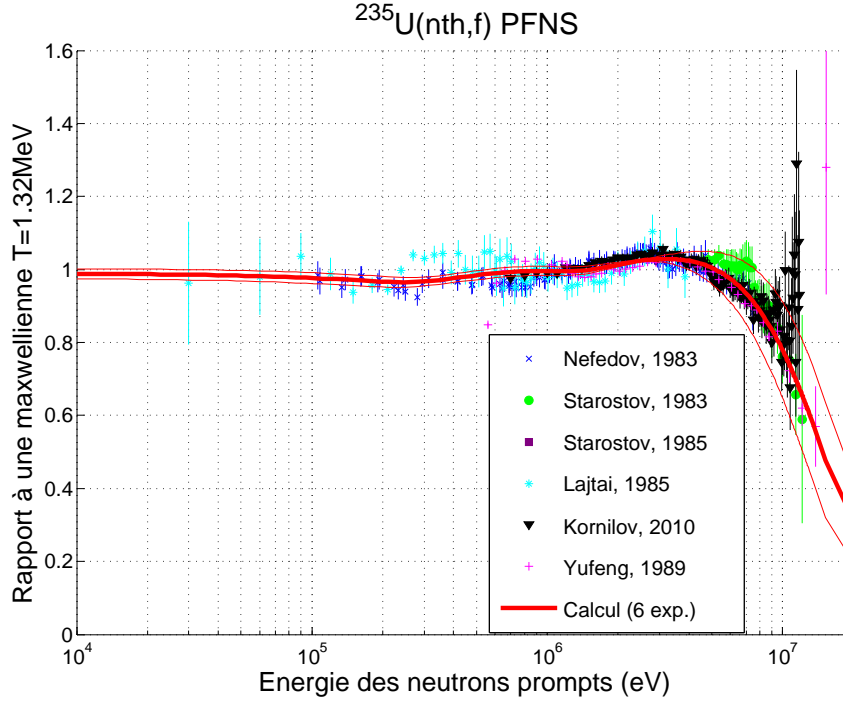


FIGURE 3.18 – Spectre ajusté, avec son bandeau d’incertitude à 1σ , sur six mesures pour le PFNS de l’ ^{235}U thermique.

3.6 Résultat pour $^{235}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$ et comparaison avec les évaluations internationales

Dans cette partie, on présente le résultat des ajustements de spectre, dans le cas des modèles de Watt, de Madland-Nix et pour la maxwellienne. Le calcul a été fait pour la fission induite par neutron thermique de l’ ^{235}U et du ^{239}Pu . Dans ces calculs, la normalisation expérimentale est traitée comme un paramètre de nuisance et marginalisée analytiquement. L’efficacité de détection est marginalisée lorsque son incertitude peut être estimée. La seule mesure pour laquelle on ait l’information sur la forme de l’efficacité et son incertitude, est la mesure de l’IRMM de 2010. En l’absence d’autres informations, on a estimé que cette mesure d’efficacité est applicable aux détecteurs organiques liquides, comme ceux utilisés pour la mesure de l’IRMM. La mesure de Yufeng *et al.* de 1989 ayant aussi utilisé ce type de détecteur, on a donc appliqué l’incertitude d’efficacité de l’IRMM pour cette mesure aussi. Aucune des mesures pour la fission thermique du ^{239}Pu n’ayant été faite avec un scintillateur organique liquide, il n’y a pas de propagation d’incertitude d’efficacité pour le spectre du ^{239}Pu thermique.

Les paramètres *a priori* utilisés, ainsi que les paramètres *a posteriori* qui ressortent du calcul après marginalisation, sont donnés dans la table 3.1 pour l’ ^{235}U et dans la table 3.2 pour le ^{239}Pu . Dans ces tables on précise aussi, pour chaque modèle, le χ^2 réduit du fit obtenu, avant marginalisation. Le fit est considéré comme d’autant meilleur que le χ^2 réduit est proche de 1. Dans notre cas on obtient des χ^2 très élevés ; preuve du fait que nos trois modèles simples ne suffisent pas à décrire le PFNS de manière satisfaisante. Le meilleur fit est obtenu via le

modèle de Madland-Nix, c'est donc celui qui a été retenu pour nos calculs. Les résultats pour la maxwellienne et le modèle de Watt, en termes de spectre et de sa matrice de covariance, peuvent être consultés dans l'annexe C.

Les figures 3.19 et 3.20 montrent les spectres obtenus pour la fission induite par neutron thermique respectivement de l' ^{235}U et du ^{239}Pu . Ces figures montrent également les spectres issus des trois évaluations internationales JEFF-3.2, JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1. Les spectres issus de JEFF-3.2 et de ENDF/B-VII.1 sont identiques, et le spectre de JENDL-4.0 est très similaire. Pour les deux systèmes fissionnants, dans les ailes du spectre, notre évaluation aboutit à un spectre plus fort à basse énergie (en dessous du MeV). A haute énergie (au-dessus de 10 MeV), notre spectre est moins fort que les spectres des évaluations pour l' ^{235}U , et plus fort pour le ^{239}Pu . Dans la plage entre 1 et 10 MeV, dans laquelle l'immense majorité des neutrons sont émis, les trois spectres évalués sont plus forts que notre spectre. Dans le cas de la fission thermique de l' ^{235}U , le rapport du spectre obtenu par notre calcul à une maxwellienne est très proche de 1 jusqu'à environ 3 MeV. Une maxwellienne de paramètre 1.32 MeV est donc une bonne approximation de notre spectre jusqu'à 3 MeV environ. Ce n'est pas le cas pour le ^{239}Pu .

Les figures 3.21 et 3.22 montrent l'incertitude obtenue sur le spectre, ainsi que l'incertitude des évaluations internationales lorsqu'elle est fournie, ce qui est le cas pour ENDF/B-VII.1 et JENDL-4.0. Les incertitudes estimées par ces deux librairies sont plus importantes que notre estimation, sur tout le domaine, en ce qui concerne l' ^{235}U . Elles aboutissent à une incertitude d'environ 8% au-dessous de 500 keV, contre environ 1% pour notre évaluation. Dans le cas du ^{239}Pu , les incertitudes des évaluations internationales au-dessus de 5 MeV sont inférieures à celles évaluées pour l' ^{235}U , tandis que notre évaluation aboutit à une incertitude du même ordre que celle sur l' ^{235}U . Au-dessus de 5 MeV, notre évaluation aboutit donc à une incertitude plus élevée que celles des évaluations internationales. Le spectre avec son bandeau d'incertitude, dans le cas de notre calcul et pour les spectres des librairies internationales, est présenté sur la figure 3.23 pour l' ^{235}U , et sur la figure 3.24 pour le ^{239}Pu .

On observe aussi de grandes disparités entre les différentes évaluations (notre calcul, JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1), en ce qui concerne la matrice de corrélation du spectre. Les figures 3.25 et 3.26 comparent ces trois matrices, pour les fissions thermiques de l' ^{235}U et du ^{239}Pu respectivement. La matrice issue de nos calculs présente une forme à deux domaines d'énergie, caractéristique de la contrainte de normalisation du spectre. La transition entre ces domaines est assez abrupte : on passe rapidement d'une corrélation de 1 à une corrélation de -1 entre les deux domaines. On a vu que cette tendance est accrue par la prise en compte de l'incertitude de normalisation des spectres expérimentaux. On devine également une énergie « pivot » dans le cas de JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1 pour l' ^{235}U .

Modèle	Paramètre	A PRIORI		A POSTERIORI		
		Valeur (MeV)	Corrélation	Valeur (MeV)	Corrélation	χ^2 réduit
maxwellienne	T	1.32 ± 0.132	-	1.322 ± 0.016	-	20.3
Watt	T_W	0.89 ± 0.09	$\text{corr}(T_W, E_f) = 0$	1.05 ± 0.065	$\text{corr}(T_W, E_f) = -0.996$	9.66
	E_f	0.78 ± 0.06		0.408 ± 0.062		
Madland-Nix	T_m	1.01 ± 0.101	$\text{corr}(T_m, E_f^L) = 0$	0.889 ± 0.039	$\text{corr}(T_m, E_f^L) = -0.539$	9.09
	E_f^L	1.06 ± 0.074	$\text{corr}(T_m, E_f^H) = 0$	1.313 ± 0.048	$\text{corr}(T_m, E_f^H) = -0.953$	
	E_f^H	0.50 ± 0.04	$\text{corr}(E_f^L, E_f^H) = 0$	0.275 ± 0.023	$\text{corr}(E_f^L, E_f^H) = 0.316$	

TABLE 3.1 – Paramètres de modèles *a priori* et *a posteriori* utilisés dans les calculs, dans le cas de la fission thermique de l' ^{235}U . On a marginalisé l'incertitude de normalisation et d'efficacité de détection dépendante de l'énergie. Le χ^2 réduit est donné avant marginalisation.

Modèle	Paramètre	A PRIORI		A POSTERIORI		
		Valeur (MeV)	Corrélation	Valeur (MeV)	Corrélation	χ^2 réduit
maxwellienne	T	1.38 ± 0.138	-	1.398 ± 0.026	-	4.9
Watt	T_W	0.10 ± 0.01	$\text{corr}(T_W, E_f) = 0$	0.946 ± 0.060	$\text{corr}(T_W, E_f) = -0.924$	27.6
	E_f	0.78 ± 0.06		0.648 ± 0.044		
Madland-Nix	T_m	1.13 ± 0.113	$\text{corr}(T_m, E_f^L) = 0$	1.157 ± 0.102	$\text{corr}(T_m, E_f^L) = -0.749$	1.9
	E_f^L	1.03 ± 0.072	$\text{corr}(T_m, E_f^H) = 0$	0.565 ± 0.555	$\text{corr}(T_m, E_f^H) = 0.605$	
	E_f^H	0.53 ± 0.01	$\text{corr}(E_f^L, E_f^H) = 0$	0.523 ± 0.412	$\text{corr}(E_f^L, E_f^H) = -0.980$	

TABLE 3.2 – Paramètres de modèles *a priori* et *a posteriori* utilisés dans les calculs, dans le cas de la fission thermique du ^{239}Pu . On a marginalisé l'incertitude de normalisation. Le χ^2 réduit est donné avant marginalisation.

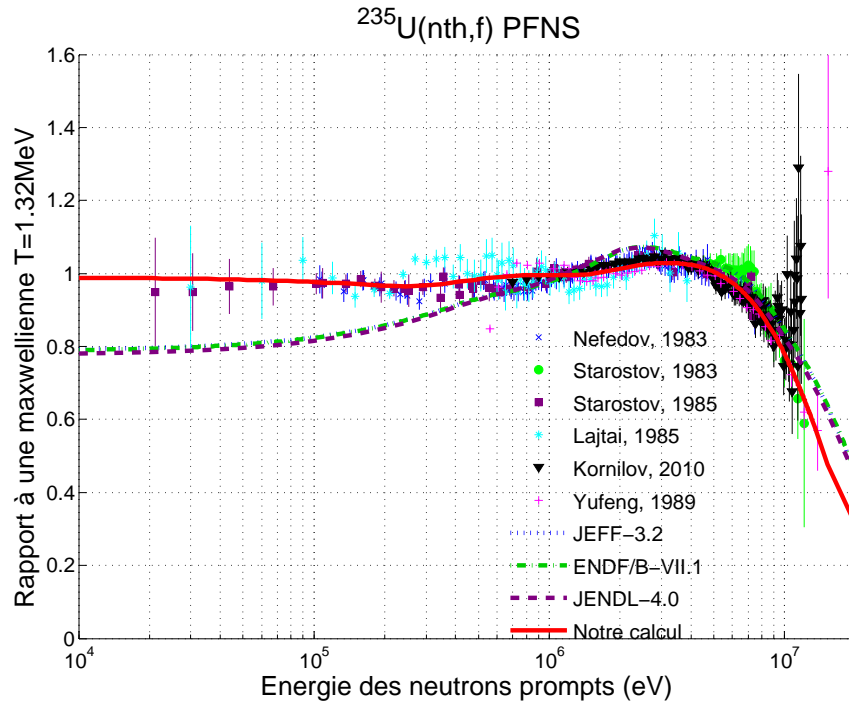


FIGURE 3.19 – Spectre obtenu pour $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. Comparaison avec les spectres évalués de JEFF-3.2, JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1.

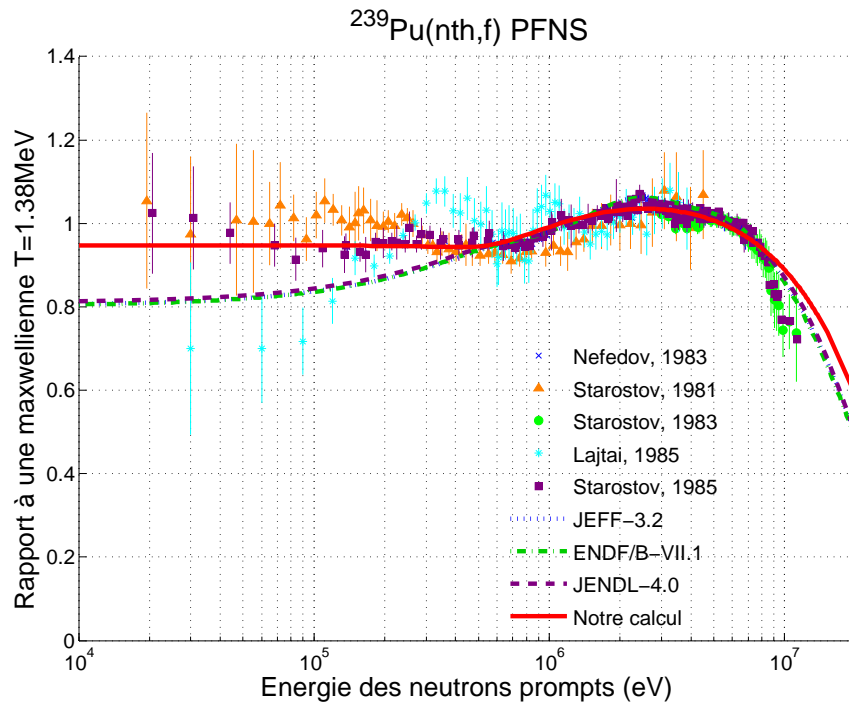


FIGURE 3.20 – Spectre obtenu pour $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. Comparaison avec les spectres évalués de JEFF-3.2, JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1.

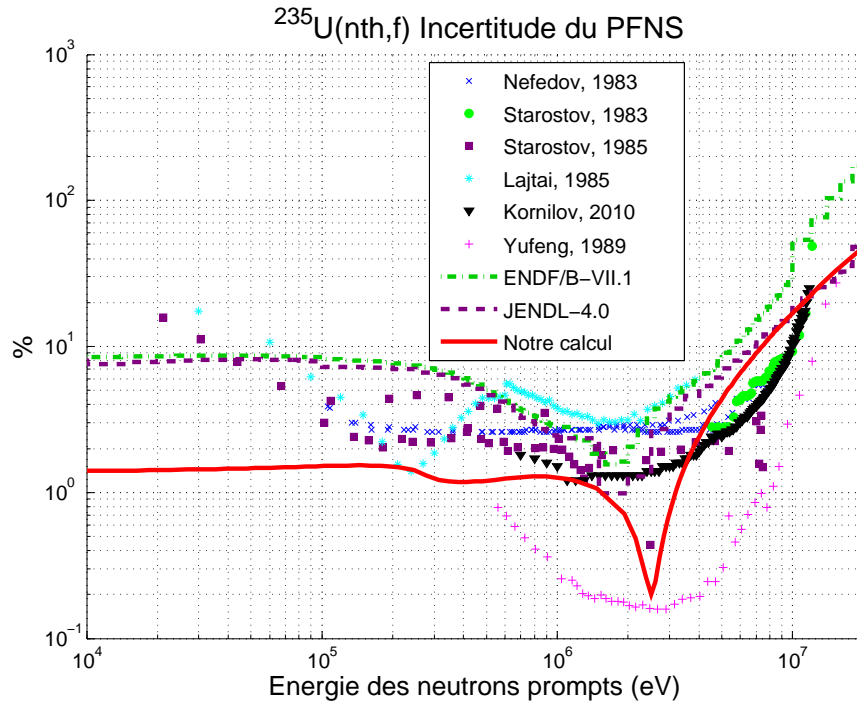


FIGURE 3.21 – Incertitude du spectre obtenue pour $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. Comparaison avec l’incertitude des spectres de JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1.

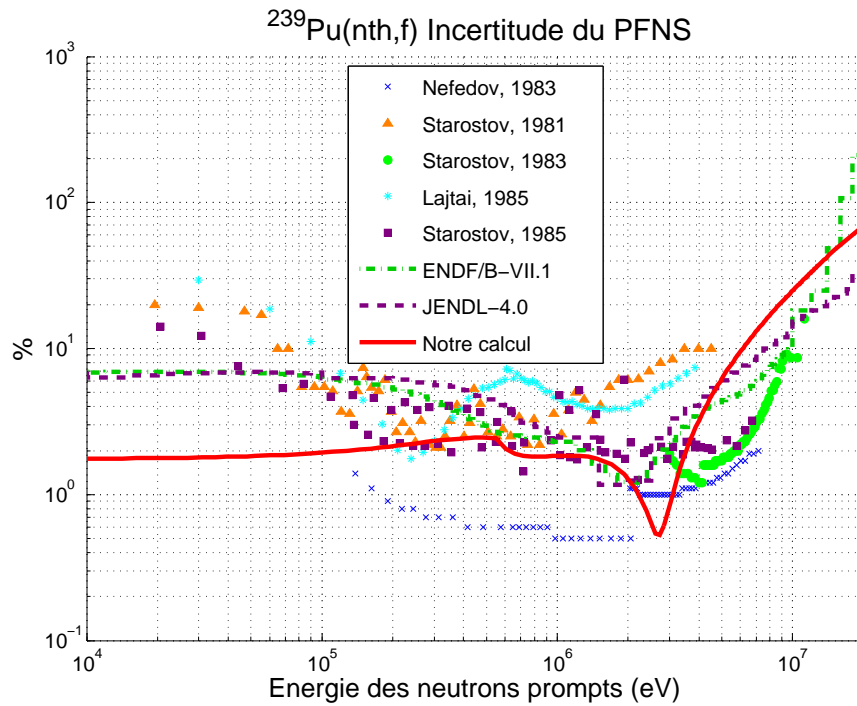


FIGURE 3.22 – Incertitude du spectre obtenue pour $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. Comparaison avec l’incertitude des spectres de JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1.

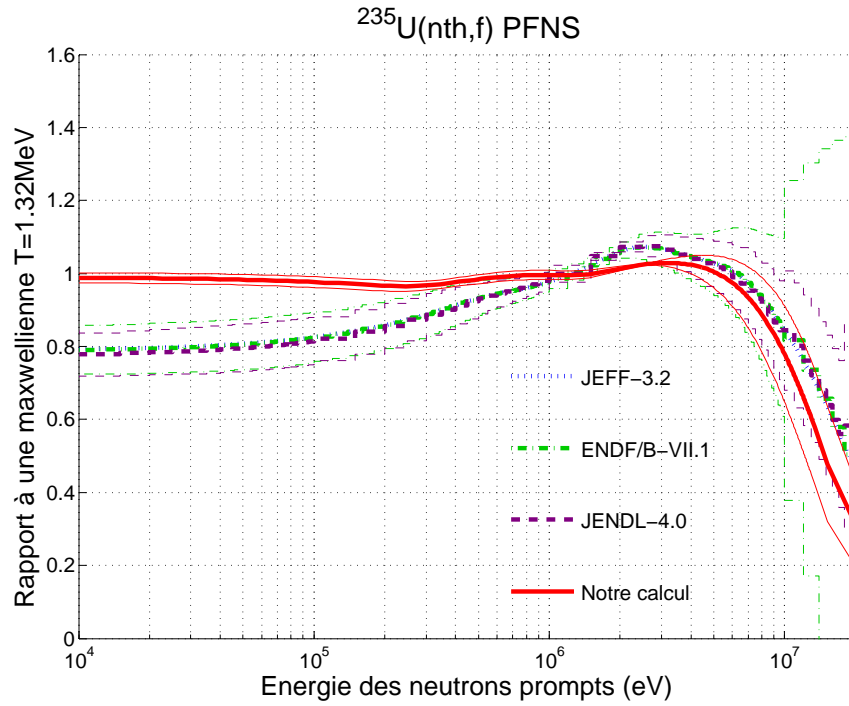


FIGURE 3.23 – Spectre obtenu, avec son bandeau d’incertitude, pour $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. Comparaison avec JEFF-3.2 (valeur moyenne seulement), JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1. Les mesures ne sont pas représentées par souci de clarté.

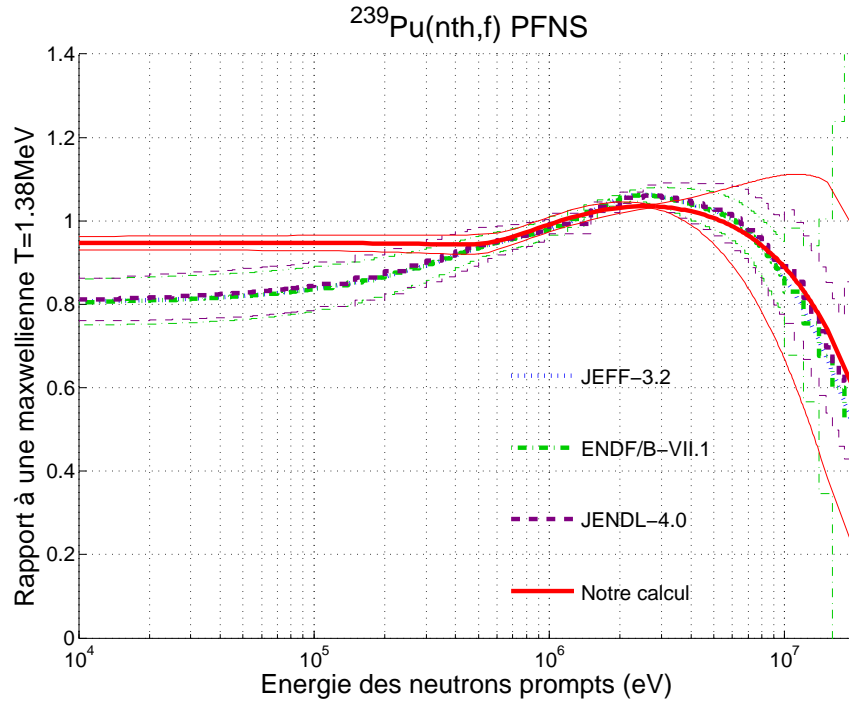


FIGURE 3.24 – Spectre obtenu, avec son bandeau d’incertitude, pour $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. Comparaison avec JEFF-3.2 (valeur moyenne seulement), JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1. Les mesures ne sont pas représentées par souci de clarté.

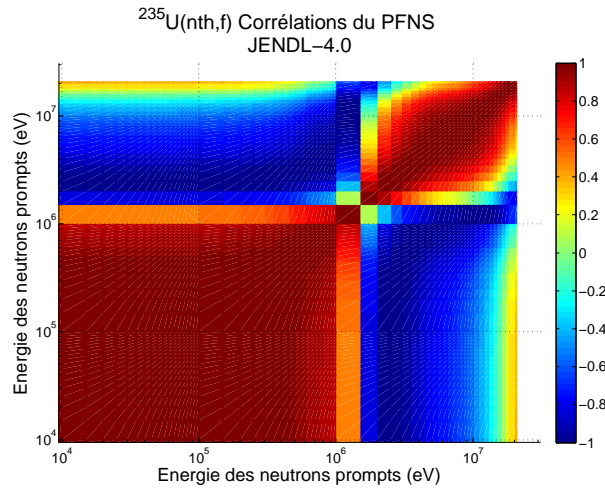
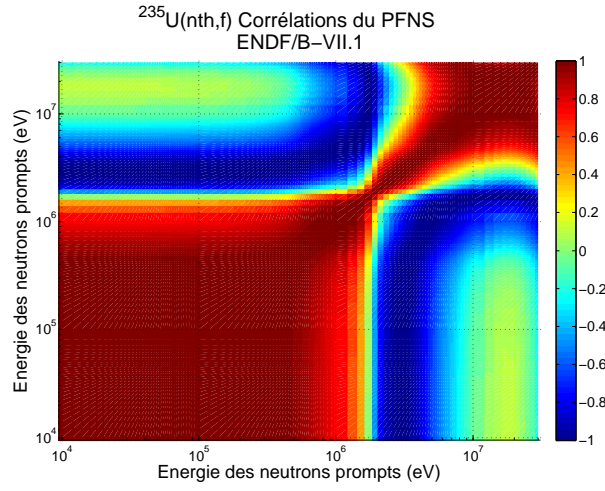
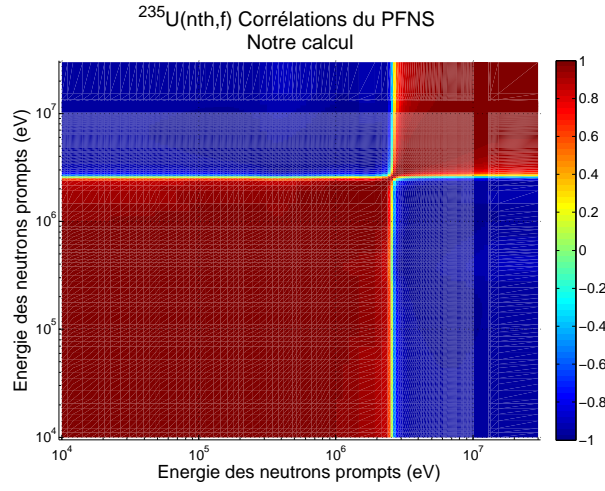


FIGURE 3.25 – Matrice de corrélation du spectre, pour $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. (a) Résultat du calcul. (b) Matrice de corrélation évaluée dans ENDF/B-VII.1. (c) Matrice de corrélation évaluée dans JENDL-4.0

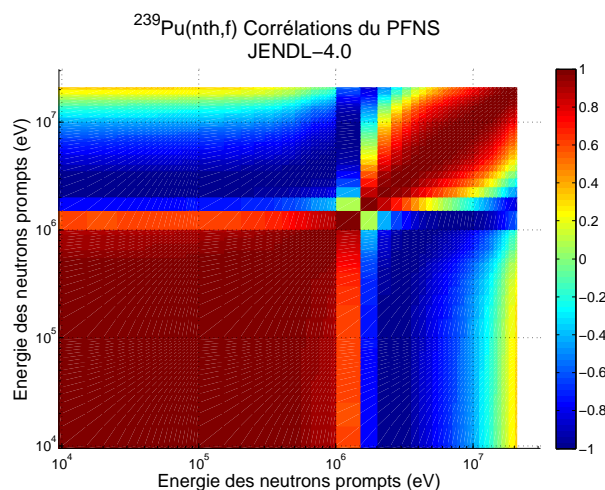
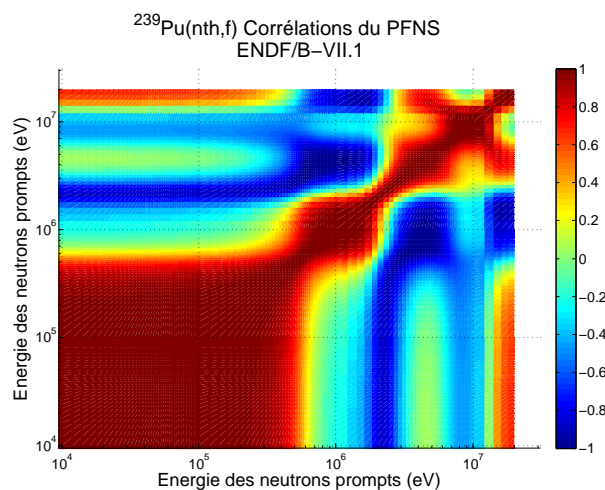
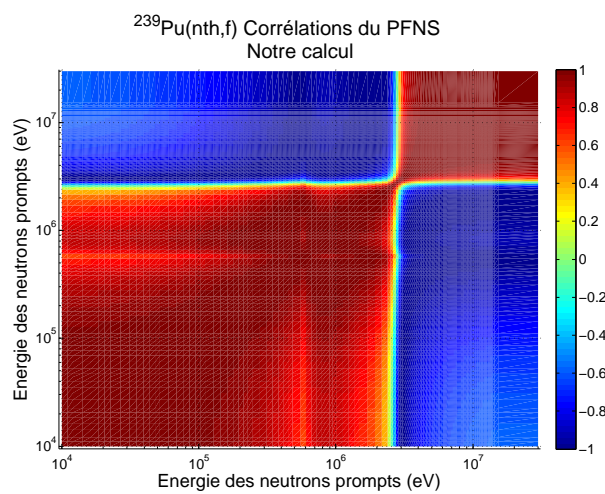


FIGURE 3.26 – Matrice de corrélation du spectre, pour $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. (a) Résultat du calcul. (b) Matrice de corrélation évaluée dans ENDF/B-VII.1. (c) Matrice de corrélation évaluée dans JENDL-4.0

On a donc vu que la matrice de covariance du spectre est très sensible à l'incertitude provenant des mesures, et notamment, à la contribution systématique de cette incertitude. On a pu le voir à travers la propagation de l'incertitude liée à la normalisation des mesures, et à l'efficacité de détection dépendante de l'énergie. Afin d'obtenir des covariances qui soient effectivement représentatives du degré de confiance attribuable à notre évaluation, il est donc primordial d'avoir des informations très complètes et précises sur la valeur et la nature des incertitudes de l'expérience. Or ces informations se trouvent difficilement, notamment pour les mesures les plus anciennes. Dans le futur, il sera nécessaire de modéliser aussi l'efficacité de détection pour les autres détecteurs que les scintillateurs organiques liquide. La technique de la marginalisation nous permet de propager ces incertitudes systématiques de façon rigoureuse, sur les incertitudes du spectre mais aussi sur la matrice de corrélation de celui-ci. En effet, la marginalisation dispense de devoir « rehausser » les incertitudes du spectre artificiellement pour tenir compte des incertitudes systématiques, sans que l'effet sur la matrice de corrélation du spectre soit prise en compte.

Un point important concernant les matrices de covariances obtenues, est qu'elle supposent que le modèle est parfait. Autrement dit, on tient seulement compte de la méconnaissance des paramètres de modèle *a priori* et de celle des mesures, mais pas de l'incertitude concernant la capacité du modèle à reproduire les données. En cela, les matrices de covariances présentées ne reflètent pas la totalité de l'erreur que l'on fait en utilisant notre évaluation pour décrire le spectre.

Dans le futur, cette méthodologie pour produire la matrice de covariance du spectre pourrait être appliquée au spectre calculé par le code FIFRELIN [45] (voir chapitre 2 sur les modèles de spectre). Cependant, pour le moment le temps de calcul de FIFRELIN rend difficile l'ajustement de ses paramètres par un algorithme de minimisation.

On a vu également qu'il est important de prendre en compte un grand nombre de mesures dans le calcul, et de considérer des mesures qui couvrent le domaine énergétique le plus large possible. Pour les systèmes fissionnants ayant été l'objet de moins de mesures, comme les fissions induites par neutron rapide, ceci peut s'avérer problématique.

La base de données COMAC du CEA/SPRC, regroupe les matrices de covariances disponibles pour les données nucléaires. Les spectres et leurs matrices de covariance obtenus dans le cadre du modèle de Madland-Nix, pour la fission de l' ^{235}U et du ^{239}Pu induite par neutron thermique, ont été inclus à la version COMAC-V1.0.

Chapitre 4

Sensibilité du flux neutronique sur la cuve d'un réacteur au spectre

Dans les réacteurs à eau pressurisée (REP) qui constituent le parc français, la matière radioactive du cœur est contenue par une cuve étanche en acier, de 20 à 30 cm d'épaisseur (figure 4.1). Au-delà de son caractère structural, elle participe au confinement de la radioactivité, et le maintien de son intégrité est un enjeu important pour la sûreté. C'est un élément qu'il n'est pas possible de remplacer au cours de la durée de fonctionnement du réacteur ; la durée de vie de ce dernier est conditionnée par celle de sa cuve. La cuve est soumise à des conditions de température et de pression élevées. Ses propriétés mécaniques changent avec la température : plus la température est élevée, plus l'acier de la cuve est ductile. On définit une valeur de seuil pour la résilience de la cuve, fixé autour de 7 daJ/cm^2 ; ce seuil définit la limite entre la zone ductile, lorsqu'on est au-dessus de cette valeur, et la zone fragile, lorsqu'on est au-dessous. Pour éviter tout risque de rupture brutale de la cuve, il convient de maintenir la cuve à une température supérieure à celle du seuil de résilience. La température à laquelle le seuil est atteint est appelée *resilient temperature* RT. La courbe de la résilience de la cuve en fonction de la température, est donnée dans la figure 4.2. On voit que dans le cas d'une cuve neuve, RT est autour de -60°C . La température de la cuve ne descendant jamais si bas, on est toujours dans un cas favorable lorsque la cuve est neuve. Cependant, au cours de l'irradiation, la courbe de la résilience en fonction de la température se décale vers les plus hautes températures, c'est ce qu'on appelle le vieillissement de la cuve. RT est décalée de ΔRT , par rapport à la valeur pour une cuve neuve. Si ΔRT devient trop important, on peut devoir chauffer la cuve pour rester dans la zone ductile. Le flux neutronique est responsable



FIGURE 4.1 – Cuve d'un réacteur [65]

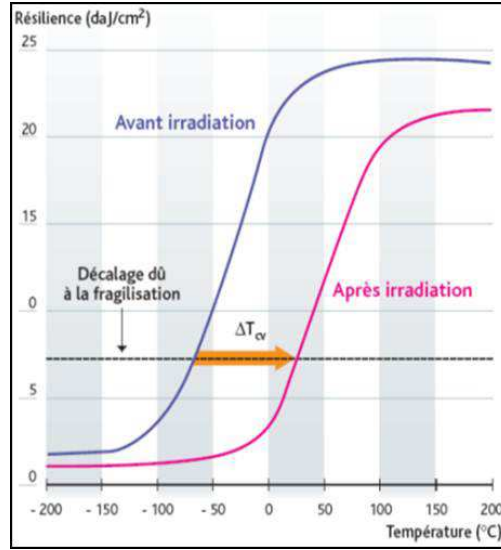


FIGURE 4.2 – Courbe de résilience de la cuve, en fonction de la température [74].

en grande partie des dommages faits à la cuve. Il existe une relation empirique, reliant ΔRT à la fluence en neutrons dont l'énergie est supérieure à 1 MeV reçus par la cuve, $F_{>1\text{MeV}}$:

$$\Delta RT = f(P, \text{Cu}, \text{Ni}) \cdot \left(\frac{F_{>1\text{MeV}}}{10^{19}} \right)^{0.59} \quad (4.1)$$

où $f(P, \text{Cu}, \text{Ni})$ est une fonction de la composition de la cuve. La fluence $F_{>1\text{MeV}}$, en n/cm^2 , est obtenue en intégrant le flux de neutrons au-dessus de 1 MeV, $\Phi_{>1\text{MeV}}$, en $\text{n}/(\text{s} \cdot \text{cm}^2)$, sur toute la durée de l'irradiation. Afin de déterminer les conditions de température adaptées à l'état de la cuve, il est donc primordial de connaître précisément le flux de neutrons auquel celle-ci est exposée. Afin d'anticiper au mieux le vieillissement des cuves de ses centrales, EDF mène un programme de surveillance de l'irradiation, qui consiste à mesurer la fluence subie par la cuve à différents instants de la vie du réacteur.

La principale source de neutrons dans un REP, vient de la fission de l' ^{235}U . Lors de la propagation d'un neutron de fission dans l'eau, celui-ci va subir plusieurs collisions, principalement sur les noyaux d'hydrogène. Ces collisions successives « thermalisent » le neutron, et peuvent conduire à l'absorption du neutron. Les neutrons arrivant sur la cuve avec une énergie supérieure à 1 MeV, sont des neutrons qui n'ont pas été thermalisés ; soit parce qu'ils ont été émis avec une énergie très élevée, soit parce qu'ils n'ont pas subi beaucoup de collisions (neutron émis proche de la cuve par exemple). C'est pourquoi, pour calculer le flux reçu par la cuve, il est important de connaître la géométrie du réacteur mais aussi le spectre de fission, et en particulier la proportion de neutrons émis à haute énergie.

On s'est ici intéressé à l'évolution du spectre du flux sur la cuve, $\Phi(E)$, lorsque l'on change arbitrairement le spectre de neutrons prompts de fission $\chi(E)$. Pour calculer le flux sur la cuve résultant de la propagation des neutrons de fission, on a utilisé la simulation Monte-Carlo, avec le code TRIPOLI-4[®]. On verra qu'afin d'éviter de relancer la simulation lorsque l'on veut faire le calcul avec un spectre différent, on pourra utiliser la fonction « importance » des neutrons, c'est à dire la probabilité qu'un neutron de fission émis avec une énergie E atteigne

la cuve avec une énergie E' . Grâce à cette fonction importance, le flux sur la cuve peut être obtenu analytiquement à partir d'un spectre donné. Ceci nous permet de comparer les flux obtenus par différents spectres couramment utilisés, comme ceux provenant des évaluations internationales. Cette fonction importance nous permet aussi, comme on le verra, de propager la matrice de covariance associée à un spectre, afin d'obtenir le flux sur la cuve résultant de la propagation du spectre de fission, ainsi que l'incertitude sur le flux sur la cuve, qui résulte de la propagation des incertitudes du spectre de fission.

4.1 Calcul du flux cuve par la simulation Monte-Carlo

Pour calculer le flux sur la cuve en fonction du spectre de fission, on utilise le code TRIPOLI-4.8[®] [10] de transport neutronique. On a traité le problème comme un calcul de propagation des neutrons. La géométrie et les matériaux modélisés sont décrits sur la figure 4.3. Il s'agit d'une modélisation d'un quart de cœur REP, utilisée dans le cadre des travaux pratiques du Génie Atomique de l'INSTN. Les neutrons sont émis dans le cœur (volumes 1 à 4 sur la figure 4.3), de manière isotrope, selon un spectre énergétique $\chi(E)$ défini par l'utilisateur. Quatre volumes sont nécessaires à la définition de la géométrie du cœur dans TRIPOLI-4[®], cependant ces quatre volumes forment une seule source homogène. Le code TRIPOLI-4[®] est un code de transport des particules (n, γ , e^- et e^+) basé sur la technique de Monte-Carlo. L'émission de chaque neutron par la source est échantillonnée (lieu d'émission dans la source, énergie et direction du neutron émis). Le code simule ensuite toute l'histoire de ce neutron jusqu'à sa disparition, en se basant sur les données nucléaires de la bibliothèque spécifiée par l'utilisateur, dans notre cas celles de JEFF-3.1.1. Pour atteindre une bonne convergence, c'est-à-dire pour réduire l'incertitude statistique, on simule 100 millions d'histoires. On applique une coupure à 100 keV : les neutrons ayant une énergie inférieure ne sont pas simulés. On renseigne également l'intensité de la source de neutrons, qui est de l'ordre de 10^{20} n/s. Le code calcule combien de neutrons par seconde arrivent sur une portion de la face interne de la cuve (face interne du petit volume 13 de la figure 4.3), et quelle est l'énergie de ces neutrons. Le code regroupe ensuite les neutrons arrivés sur la cuve par groupes d'énergie, selon un découpage spécifié par l'utilisateur. À partir d'un spectre source $\chi(E)$ fourni en entrée, on obtient un flux neutronique Φ_g sur la cuve pour chaque groupe d'énergie g :

$$\chi(E) \xrightarrow{\text{TRIPOLI-4}^{\text{®}}} \Phi_g \quad (4.2)$$

Dans ce calcul, on assimile le spectre $\chi(E)$ au spectre de neutrons prompts de la fission thermique de ^{235}U . On se place donc dans le cas d'un combustible UO_2 à faible burn-up (fission du ^{239}Pu négligeable). Le spectre est ici totalement décorrélié des données nucléaires utilisées pour la simulation. Celles-ci ne varient pas, on utilise dans tous les cas les données nucléaires de JEFF-3.1.1. En revanche, le spectre d'émission de la source est choisi arbitrairement par l'utilisateur, il peut provenir d'une autre librairie évaluée, ou d'un calcul. À titre d'exemple, la figure 4.4 montre le spectre de neutrons prompts pour la fission thermique de ^{235}U , issu de la librairie JEFF-3.2 (qui est par ailleurs identique à celui de JEFF-3.1.1), et le spectre du flux sur la cuve qui en résulte après le calcul TRIPOLI-4[®]. On a représenté le spectre condensé en groupes d'énergie dans le même maillage que celui du flux sur la cuve, afin de pouvoir comparer directement, pour chaque groupe, la part des neutrons émis et reçus. La part des neutrons de basse énergie est plus importante sur la cuve qu'à l'émission des neutrons.

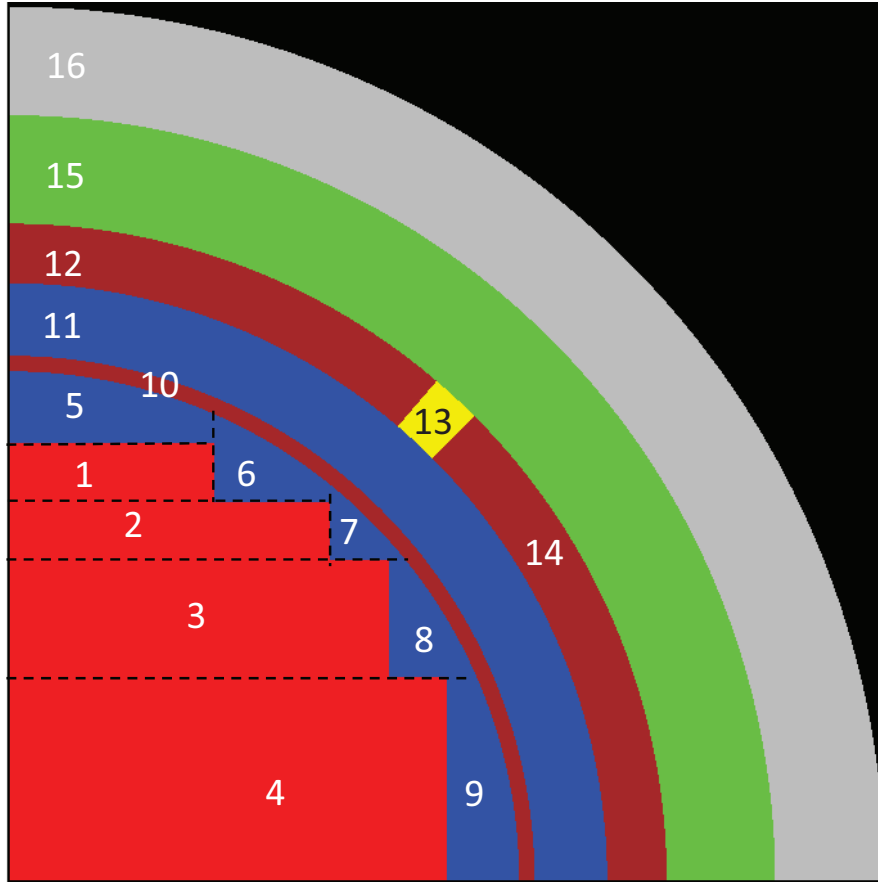
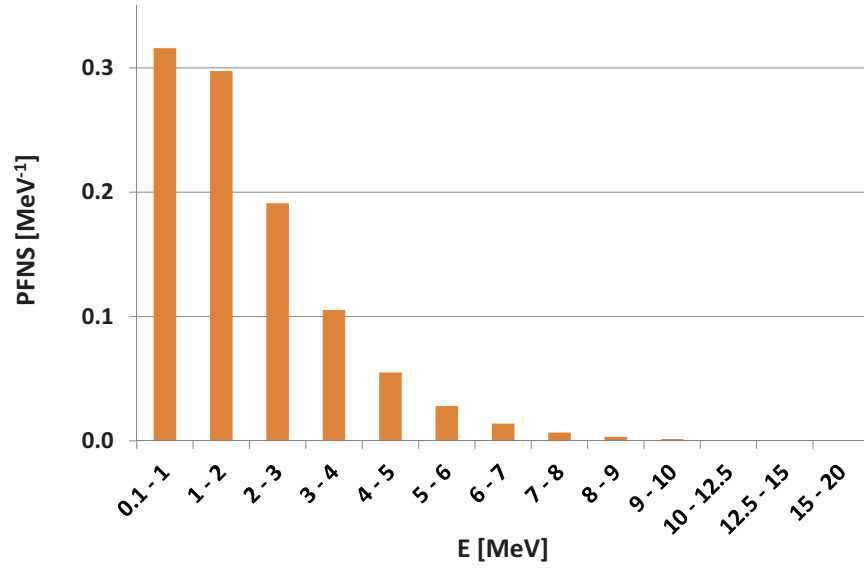
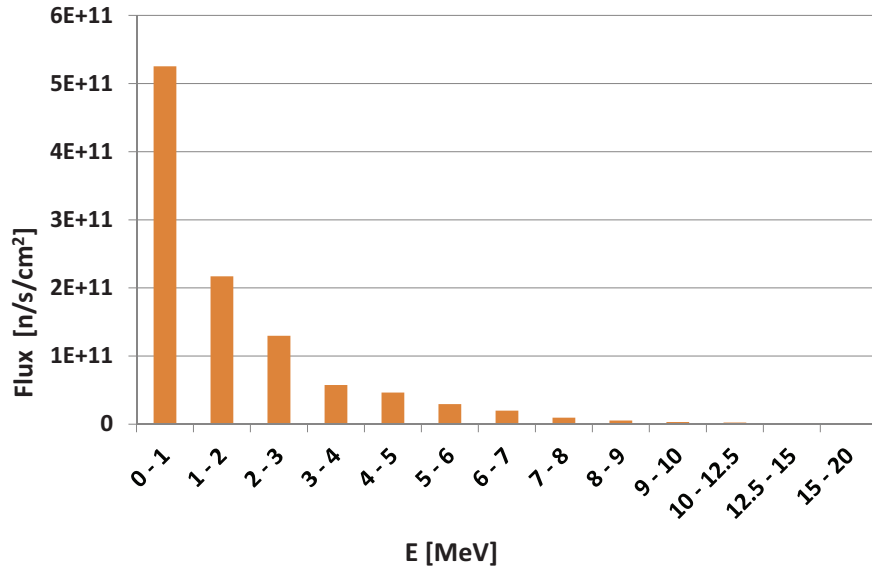


FIGURE 4.3 – Configuration simulée avec TRIPOLI-4.8[®] pour le calcul du flux sur la cuve. Les volumes 1 à 4 correspondent au cœur, composé de ^1H , ^{10}B , ^{52}Cr , ^{54}Fe , ^{90}Zr et ^{235}U . C'est la source de neutrons. Le caloporteur est modélisé par les volumes 5 à 9 (eau chaude) et 11 (eau froide). L'eau chaude et l'eau froide sont séparées par une enveloppe en inox (volume 10). Les volumes 12, 13 et 14 modélisent la cuve en acier. Le volume 13 délimite la surface de comptage des neutrons sur la cuve. Une épaisseur de vide (volume 15) sépare la cuve de la protection primaire en béton (volume 16).



(a)



(b)

FIGURE 4.4 – (a) Mise en groupe du spectre de neutrons prompts pour la fission thermique de l' ^{235}U issu de la librairie JEFF-3.2. (b) Flux sur la cuve obtenu par le calcul TRIPOLI-4[®] en utilisant comme spectre source, le spectre de la figure (a) (considéré en énergie continue).

4.2 Fonction importance des neutrons sur le flux à la cuve

Une façon d’observer la variation de Φ_g avec $\chi(E)$ est de répéter le calcul en modifiant le spectre d’entrée. Cependant, il peut paraître fastidieux de répéter la simulation pour chaque spectre source. En effet, lorsqu’un neutron est émis à un point spécifique du cœur, dans une direction spécifique et avec une énergie donnée, le destin de ce neutron ne dépend que de la géométrie, des matériaux et des données nucléaires utilisés. Il est donc *a priori* inutile de réitérer la simulation lorsqu’on change uniquement le spectre source, c’est-à-dire la proportion des neutrons émis à une énergie donnée. En pratique, dans un calcul classique, le code donne le résultat, en l’occurrence Φ_g , et ne garde pas en mémoire la simulation qui a abouti à ce résultat ; d’où l’obligation de réitérer la simulation pour calculer un flux associé à un autre spectre source. Il existe un moyen dans TRIPOLI-4[®] de sauvegarder l’histoire des neutrons qui ont été simulés — celle-ci ne dépend que de la configuration du milieu et des données nucléaires — en utilisant le formalisme des bandes de Green (voir manuel [10]). Dans notre cas, cette méthode permet notamment de connaître non seulement l’énergie des neutrons qui arrivent sur la cuve, mais aussi l’énergie qu’ils avaient lorsqu’ils ont été émis par la source. Autrement dit, on calcule $\Phi_{gg'}$: le flux de neutrons émis avec une énergie appartenant au groupe g , et arrivés sur la cuve avec une énergie appartenant au groupe g' :

$$\chi(E) \xrightarrow{\text{TRIPOLI-4}^{\text{®}}} \Phi_{gg'} \quad (4.3)$$

A partir de là, il est aisé de séparer la partie « simulation », qui ne dépend pas du spectre $\chi(E)$, de ce résultat. Notons $P_{gg'}$ la probabilité qu’un neutron émis avec une énergie dans le groupe g , contribue au comptage sur la surface avec une énergie dans le groupe g' . On appelle $P_{gg'}$ « fonction importance » des neutrons. On peut alors noter :

$$\Phi_{gg'} = \frac{N}{S} \cdot \chi_g \cdot \Delta E_g \cdot P_{gg'} \quad (4.4)$$

où χ_g est la valeur du spectre condensé pour le groupe g , et ΔE_g est la largeur du groupe g , de sorte que $\chi_g \cdot \Delta E_g$ est la probabilité qu’un neutron soit émis dans le groupe g . N est l’intensité de la source en n/s, et S est la surface de comptage sur la face interne de la cuve. De notre calcul de $\Phi_{gg'}$, on déduit alors directement $P_{gg'}$ via l’équation 4.4. Le flux sur la cuve dans chaque groupe g' s’écrit :

$$\Phi_{g'} = \sum_g \Phi_{gg'} = \frac{N}{S} \sum_g (\chi_g \cdot \Delta E_g \cdot P_{gg'}) \quad (4.5)$$

Le flux sur la cuve $\Phi_{g'}^*$, associé à un nouveau spectre source $\chi^*(E)$, sera obtenu sans nouvelle simulation, directement via :

$$\Phi_{g'}^* = \frac{N}{S} \sum_g (\chi_g^* \cdot \Delta E_g \cdot P_{gg'}) \quad (4.6)$$

Le flux sur la cuve pour n’importe quel spectre source peut être obtenu sans l’aide de simulation additionnelle :

$$(\chi_g, P_{gg'}) \xrightarrow{\text{Eq. 4.5}} \Phi_{g'} \quad (4.7)$$

Cette méthodologie a récemment été testée et validée par Bourganel *et al.* dans la référence [9]. Le calcul de $P_{gg'}$ a été effectué en prenant l’évaluation du spectre de Madland-Nix

provenant de l'ajustement présenté dans le chapitre 3. La configuration est la même que celle présentée sur la figure 4.3. Afin de pouvoir comparer la contribution de chaque groupe sur le spectre des neutrons émis et sur le flux à la cuve, on choisit le même découpage énergétique pour l'énergie des neutrons à l'émission et pour l'énergie des neutrons sur la cuve. Afin d'obtenir un nombre d'évènements suffisant dans chaque groupe, on choisit un maillage à 13 groupes, avec les dix premiers groupes ayant une largeur de 1 MeV, puis trois groupes pour les énergies entre 10 et 20 MeV. Le flux $\Phi_{gg'}$ et son incertitude sont présentés sur les figures 4.5 et 4.6. L'incertitude correspond à l'incertitude statistique du Monte-Carlo. Dans les groupes d'énergie entre 1 et 9 MeV, là où les neutrons émis sont les plus nombreux, l'incertitude statistique est généralement inférieure à 1%. De ce fait, dans la suite du chapitre on négligera cette incertitude, afin d'isoler l'incertitude due seulement aux covariances du spectre. $\Phi_{gg'}$ n'est défini que lorsque le groupe g' d'arrivée correspond à des énergies inférieures à celles du groupe source g , ce qui se traduit par une matrice triangulaire. En effet, il n'y a pas d'*up-scattering* pour les neutrons simulés puisqu'on ne simule pas les neutrons d'énergie inférieure à 100 keV. Les neutrons sont ralentis et n'atteignent jamais la cuve avec une énergie supérieure à leur énergie à l'émission, d'où l'absence d'évènements lorsque $g' > g$. La fonction importance déduite de ce calcul est présentée sur la figure 4.7. Bien entendu, la somme de $P_{gg'}$ sur tous les groupes d'émission et d'arrivée ne donne pas 100%, d'abord parce qu'il s'agit de la probabilité d'atteindre une petite portion de la cuve, et d'autre part, parce que la majorité des neutrons seront absorbés avant d'atteindre la cuve.

On constate conformément à ce qui est attendu, que les neutrons de plus haute énergie ont une probabilité plus importante d'atteindre la cuve. Les neutrons émis au-dessus de 15 MeV sont ceux qui ont le plus de chances d'arriver sur la cuve, et y arrivent majoritairement avec une énergie inférieure à 1 MeV (probabilité d'environ 0.02%). Cependant, ces neutrons sont très peu émis, les neutrons sont émis pour la majorité dans des groupes d'énergie beaucoup plus faible. La plus large contribution au flux sur la cuve vient finalement des neutrons émis entre 2 et 7 MeV, bien que ceux-là aient une probabilité environ 10 fois moins élevée d'arriver sur la cuve avec une énergie inférieure à 1 MeV.

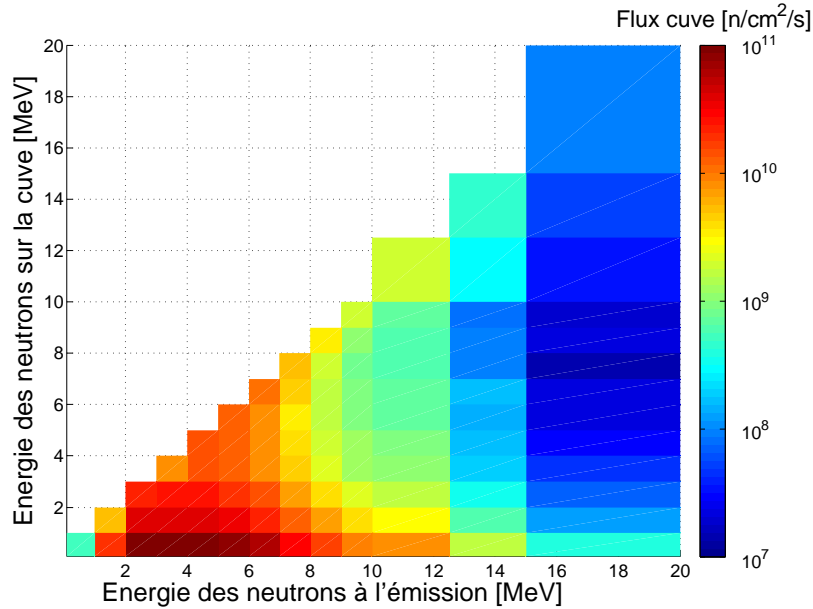


FIGURE 4.5 – Flux sur la cuve $\Phi_{gg'}$ calculé pour un spectre de Madland-Nix

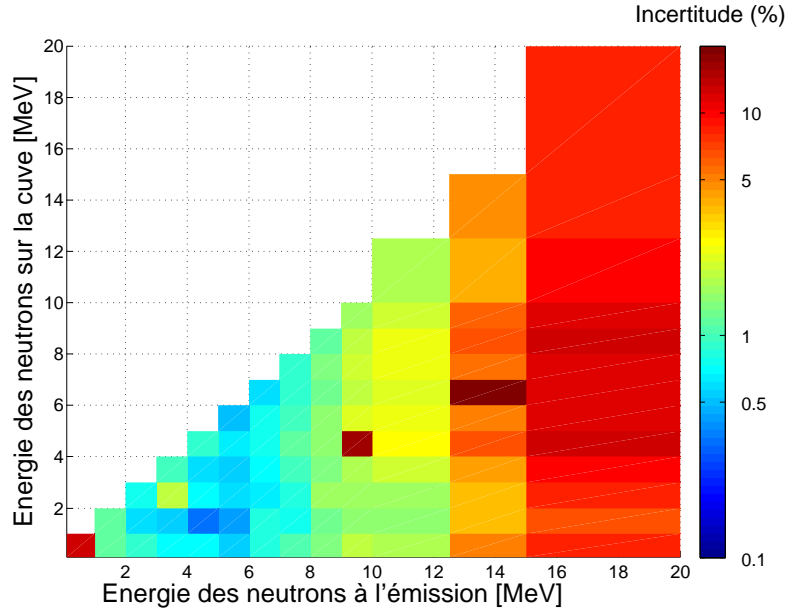


FIGURE 4.6 – Incertitude relative sur le flux à la cuve $\Phi_{gg'}$ calculé pour un spectre de Madland-Nix

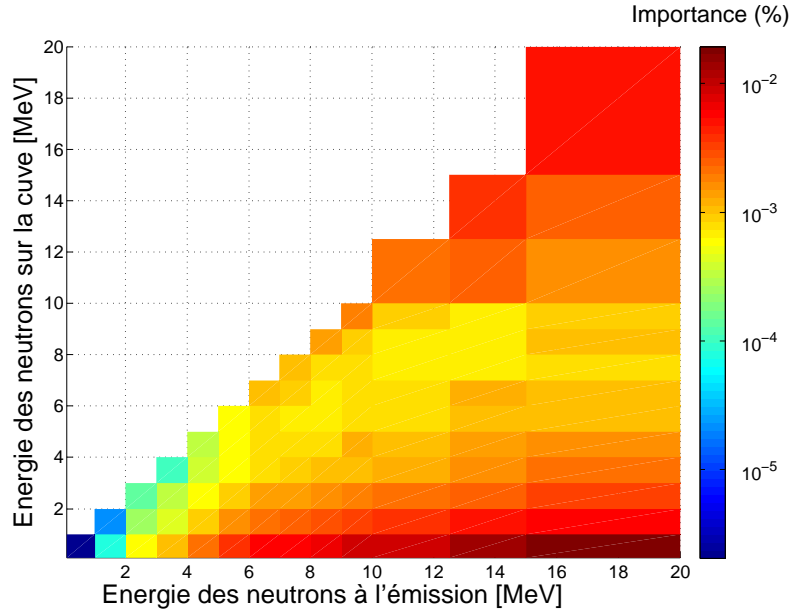


FIGURE 4.7 – Fonction importance des neutrons $P_{gg'}$: probabilité qu'un neutron émis dans le groupe d'énergie g , atteigne la surface de comptage sur la cuve (face interne du volume 13 de la figure 4.3) avec une énergie dans le groupe g' . Calculée à partir du flux $\Phi_{gg'}$ (Madland-Nix).

La contribution relative C_g de chaque groupe source au flux total se déduit directement de $\Phi_{gg'}$:

$$C_g = \frac{\sum_{g'} \Phi_{gg'}}{\sum_g \sum_{g'} \Phi_{gg'}} \quad (4.8)$$

De même, on peut calculer la contribution $C_g^{>1 \text{ MeV}}$ de chaque groupe source au flux supérieur à 1 MeV. À noter que C_g et $C_g^{>1 \text{ MeV}}$, contrairement à $P_{gg'}$, dépendent du spectre utilisé pour le calcul, tout comme $\Phi_{gg'}$. Les contributions de chaque groupe source au flux supérieur à 1 MeV sont présentées dans la figure 4.8. Comme on le voyait déjà sur la figure 4.5, les groupes participant le plus au flux supérieur à 1 MeV sont les groupes d'émission entre 2 et 7 MeV.

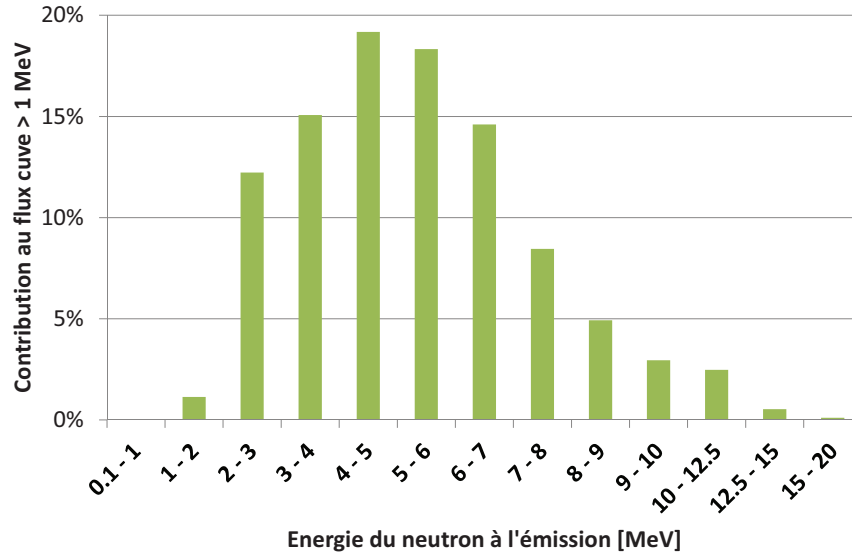


FIGURE 4.8 – Contribution relative $C_g^{>1 \text{ MeV}}$ des groupes d'énergie à l'émission au flux sur la cuve supérieur à 1 MeV, calculée à partir du flux $\Phi_{gg'}$ (provenant du spectre Madland-Nix).

4.3 Comparaison du flux sur la cuve provenant de différents spectres

Plusieurs évaluations différentes existent pour décrire le spectre des neutrons prompts de la fission thermique de ^{235}U . Parmi elles, on peut citer l'évaluation de Cranberg du modèle de Watt (voir chapitre 2, équation 2.9), dont les paramètres sont $T_W^C = 0.965 \text{ MeV}$ et $E_f^C = 0.533 \text{ MeV}$. On trouve aussi l'évaluation de l'ancienne librairie ENDF/B-V, qui est également une évaluation du modèle de Watt, avec les paramètres $T_W^{\text{BV}} = 0.988 \text{ MeV}$ et $E_f^{\text{BV}} = 0.549 \text{ MeV}$. Cette librairie est une version antérieure de la librairie actuelle ENDF/B-VII.1. Cependant, le PFNS pour ^{235}U de ENDF/B-V est plus simple d'utilisation car c'est un spectre de Watt, entièrement défini par seulement deux paramètres. Le PFNS pour ^{235}U de ENDF/B-VII.1 provient d'une évaluation plus complexe et est donc donnée sous forme tabulée. Pour cette raison, le spectre de ENDF/B-V reste parfois utilisé dans les calculs de

propagation neutronique. Les évaluations qui font foi aujourd’hui sont les trois grandes évaluations internationales : ENDF/B-VII.1 [14], JEFF-3.2 [53] et JENDL-4.0 [64] ; les spectres de neutrons prompts pour la fission thermique de ^{235}U sont donnés dans ces évaluations sous forme tabulée, et ils proviennent tous les trois d’un modèle Madland-Nix « amélioré ». On testera également ici les spectres obtenus par l’ajustement des paramètres de modèle présenté au chapitre 3 : la maxwellienne ajustée, ainsi que le spectre de Watt et de Madland-Nix, dont les paramètres sont donnés dans la table 3.1. Enfin, on considère le spectre calculé par le code FIFRELIN avec le modèle de Weisskopf (voir chapitre 2 sur les modèles de spectre).

Afin de calculer le flux sur la cuve associé à chacun de ces spectres selon l’équation 4.5, il faut d’abord les mettre en groupes selon le même maillage que pour $P_{gg'}$ obtenu via notre simulation avec les bandes de Green. Dans le cas des spectres que l’on peut décrire par une fonction de l’énergie, comme la maxwellienne, les trois spectres de Watt et le spectre de Madland-Nix, il s’agit d’une simple intégration. Lorsqu’il s’agit de spectres tabulés tirés des évaluations internationales, on utilise un utilitaire en C++, créé dans le cadre de la thèse, pour la lecture, l’écriture et le processing des PFNS et de leurs matrices de covariance au format ENDF (voir annexe B). Pour la partie processing (interpolations entre les énergies incidentes et/ou sortantes, mise en groupes des spectres ou des covariances), cet utilitaire est équivalent au code NJOY [46].

Les différents spectres source sont présentés en énergie continue sur la figure 4.9a, comme un rapport à une maxwellienne d’énergie moyenne 1.98 MeV. La figure 4.9b montre les mêmes spectres condensés en groupe, présentés relativement au spectre de JEFF-3.2. Les flux sur la cuve $\Phi_{g'}$ qui en résultent sont présentés sur la figure 4.10, en absolu, et relativement au flux obtenu avec le spectre de JEFF-3.2. Lorsqu’on s’intéresse aux représentations relatives, on ne représente pas les trois groupes d’énergie supérieure à 10 MeV. En effet, au-dessus de cette énergie, les flux étant très faibles, les différences relatives deviennent très élevées. En comparant les écarts entre les spectres source (figure 4.9b) et entre les flux qui en résultent (figure 4.10b), on observe qu’ils sont du même ordre dans la plupart des groupes d’énergie. Les écarts dans le spectre source dans un groupe influencent l’écart dans le flux à la cuve des groupes d’énergie inférieure, du fait du ralentissement des neutrons. Par exemple, prenons la part des neutron émis entre 7 et 8 MeV : le spectre FIFRELIN prévoit cette part environ 3% inférieure à ce que prévoit le spectre issu de JEFF-3.2. Cependant, sur la cuve, le spectre de FIFRELIN aboutit à environ 5% de plus de neutrons entre 7 et 8 MeV que ce qu’on obtient par le spectre de JEFF-3.2. Ceci est dû au fait que dans les groupes d’énergies supérieure à 8 MeV, le spectre FIFRELIN prévoit plus de neutrons émis que JEFF-3.2. Ces neutrons ralentissent et viennent contribuer au flux de neutrons entre 7 et 8 MeV, qui se retrouve alors supérieur à celui obtenu par JEFF-3.2. Les trois évaluations internationales, JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 et JENDL-4.0 donnent des spectres très proches et on observe donc très peu d’écart dans le flux obtenu pour chacun d’eux. En revanche, les spectres de FIFRELIN, de Cranberg, la maxwellienne et le Madland-Nix ajusté donnent un flux sur la cuve relativement différent de celui donné par les évaluations internationales.

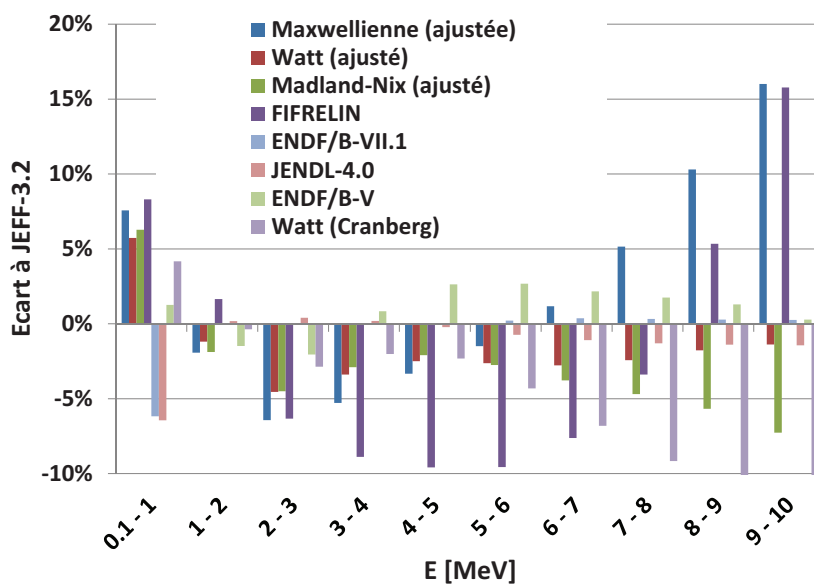
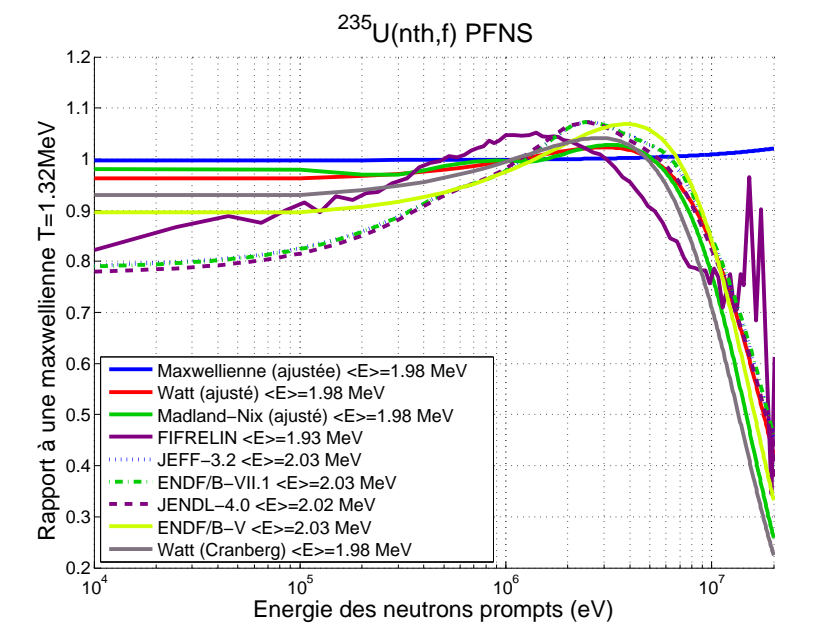
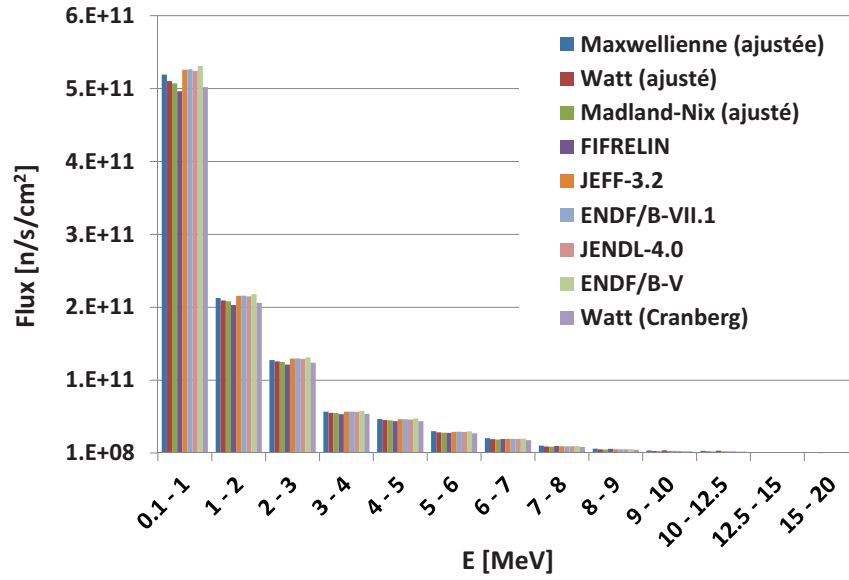
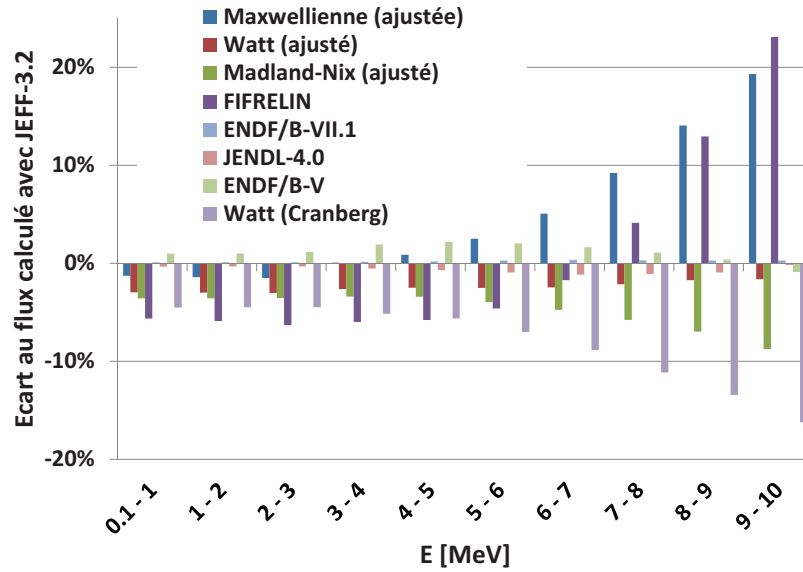


FIGURE 4.9 – (a) Spectres source en énergie continue, rapportés à une maxwellienne d'énergie moyenne 1.98 MeV. L'énergie moyenne des spectres est précisé sur le graphe. (b) Ecart des spectres (condensés) au spectre de JEFF-3.2.



(a)



(b)

FIGURE 4.10 – Flux sur la cuve obtenu pour chaque spectre source, en absolu (a) et relativement au flux obtenu pour le spectre de JEFF-3.2 (b).

Le flux supérieur à 1 MeV, calculé pour chaque spectre, est donné dans la table 4.1, également à la fois en absolu et relativement au flux obtenu avec le spectre de JEFF-3.2. On constate que, malgré les écarts importants dans chaque groupe d'énergie entre les flux obtenus par la maxwellienne et par le spectre JEFF-3.2, ceux-ci se compensent sur le flux supérieur à 1 MeV. Les deux autres évaluations internationales ENDF/B-VII.1 et JENDL-4.0 donnent également un flux proche de celui obtenu avec le spectre JEFF-3.2. Le spectre donnant le flux le plus éloigné de celui obtenu avec JEFF-3.2 est le spectre de Cranberg.

Evaluation de $\chi(E)$	Flux supérieur à 1 MeV (n/s/cm ²)	Ecart au flux calculé avec JEFF-3.2
Maxwellienne (ajustée)	$5.19 \cdot 10^{11}$	+0.08%
Watt (ajusté)	$5.04 \cdot 10^{11}$	-2.82%
Madland-Nix (ajusté)	$4.99 \cdot 10^{11}$	-3.76%
FIFRELIN	$4.94 \cdot 10^{11}$	-4.84%
JEFF-3.2	$5.19 \cdot 10^{11}$	0.00%
ENDF/B-VII.1	$5.19 \cdot 10^{11}$	+0.15%
JENDL-4.0	$5.16 \cdot 10^{11}$	-0.47%
ENDF/B-V	$5.25 \cdot 10^{11}$	+1.29%
Watt (Cranberg)	$4.91 \cdot 10^{11}$	-5.35%

TABLE 4.1 – Flux supérieur à 1 MeV sur la cuve, calculé en utilisant différentes évaluations pour le spectre de la source, suivant l'équation 4.5.

4.4 Propagation des covariances du spectre source au flux sur la cuve

Le calcul « analytique » du flux sur la cuve à partir du spectre source, donné par l'équation 4.5, permet également de pouvoir propager la matrice de covariance du spectre source M_χ , afin d'obtenir la matrice de covariance du flux cuve M_Φ . En effet, la formule de propagation des covariances au premier ordre nous donne :

$$M_\Phi = G M_\chi G^\top \quad (4.9)$$

avec

$$G_{gg'} = \frac{\partial \Phi_{g'}}{\partial \chi_g} = \frac{N}{S} \Delta E_g P_{gg'} \quad (4.10)$$

On obtient ainsi l'incertitude sur le flux dans chaque groupe $\Phi_{g'}$, ainsi que la matrice de corrélation du flux. Cette matrice de covariance provient seulement des covariances du spectre source. Elle ne tient pas compte des autres sources d'incertitude (technologiques, données nucléaires, incertitude statistique du Monte-Carlo). Ceci nécessite de mettre les matrices de covariance des spectres dans le maillage approprié. Pour cela, on utilise dans notre utilitaire un algorithme équivalent à celui du modèle ERRORR du code NJOY (voir manuel NJOY [46]).

Parmi les spectres étudiés dans la section 4.3, on dispose d'une matrice de covariance pour ceux de JENDL-4.0 et de ENDF/B-VII.1, ainsi que pour la maxwellienne et les spectres de Watt et de Madland-Nix ajustés. On ne montrera pas ici l'incertitude des flux associés à la maxwellienne et au spectre de Watt, car l'évaluation du spectre que nous avons retenue suite au travail présenté au chapitre 3 est celle du modèle de Madland-Nix. On pourra cependant trouver les résultats dans l'annexe C pour la maxwellienne et le spectre de Watt.

La figure 4.11 donne l'incertitude relative sur les spectres sources, tandis que l'incertitude relative sur les flux associés sur la cuve, résultant de l'équation 4.9, sont présentés sur la figure 4.12. De même, les matrices de corrélation mises en groupes pour les spectres sont

données sur la figure 4.13, et la figure 4.14 donne les matrices de corrélation des flux associés. On observe que l'incertitude relative sur le flux est plus élevée que celle sur le spectre source, en raison du ralentissement des neutrons issus des groupes supérieurs, pour lesquels l'incertitude sur le spectre d'émission est élevée. En ce qui concerne la matrice de corrélation du flux cuve, on observe que le flux dans un groupe est toujours positivement corrélé au flux dans un autre groupe, bien que les spectres source dans deux groupes soient parfois corrélés négativement. Ceci s'explique par le fait que les corrélations négatives dans le spectre source, font intervenir des énergies qui ne contribuent pas ou très peu au flux sur la cuve. Les groupes source qui contribuent au flux correspondent aux hautes énergies, pour lesquelles le spectre est corrélé positivement.

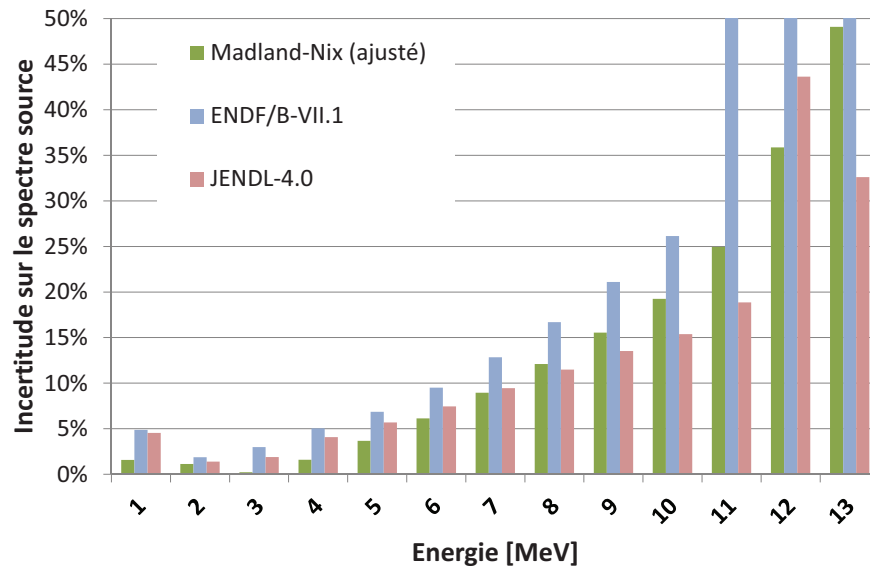


FIGURE 4.11 – Incertitude sur les spectres sources condensés. L'échelle est tronquée à 50% d'incertitude afin d'avoir une bonne visibilité sur les incertitudes sur les groupes de basse énergie. L'évaluation de ENDF/B-VII.1 a des incertitudes supérieures à 50% dès 10 MeV.

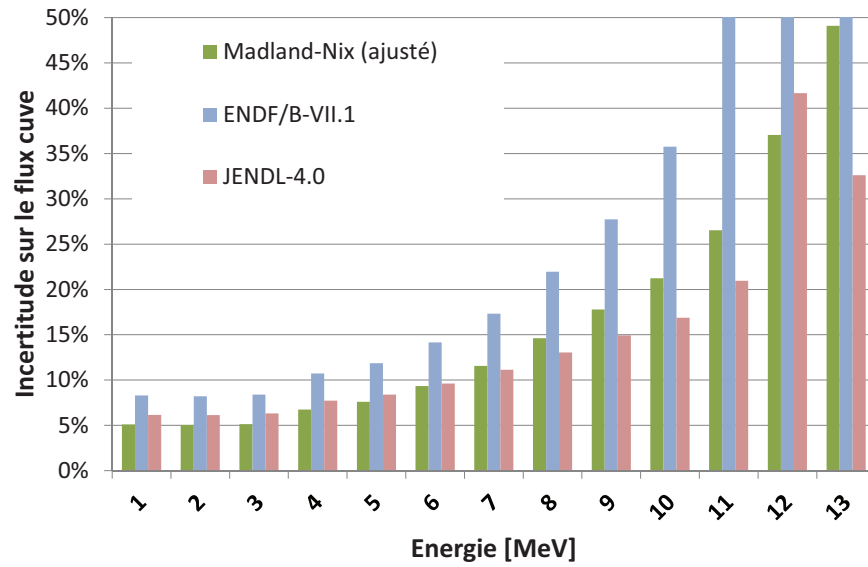
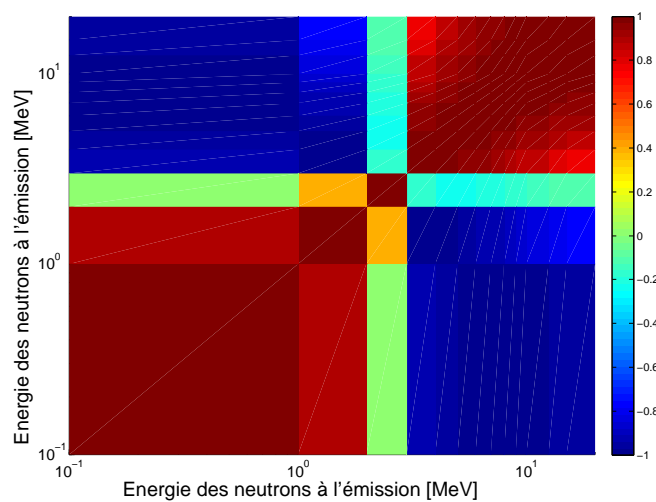
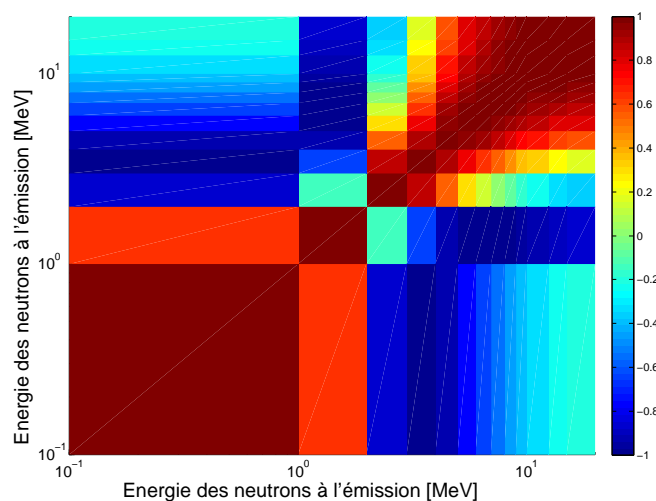


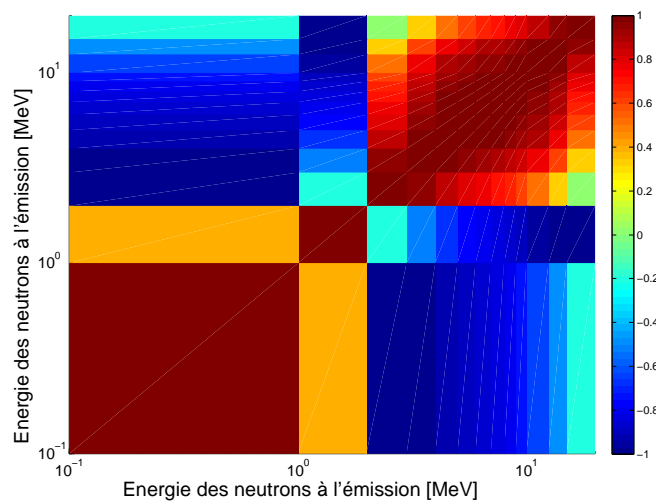
FIGURE 4.12 – (b) Incertitude sur les flux qui résultent des différents spectres sur la cuve. L'échelle est tronquée à 50% d'incertitude afin d'avoir une bonne visibilité sur les incertitudes sur les groupes de basse énergie. L'évaluation de ENDF/B-VII.1 donne des incertitudes sur le flux supérieures à 60% dès 10 MeV.



(a) Madland-Nix (ajusté)

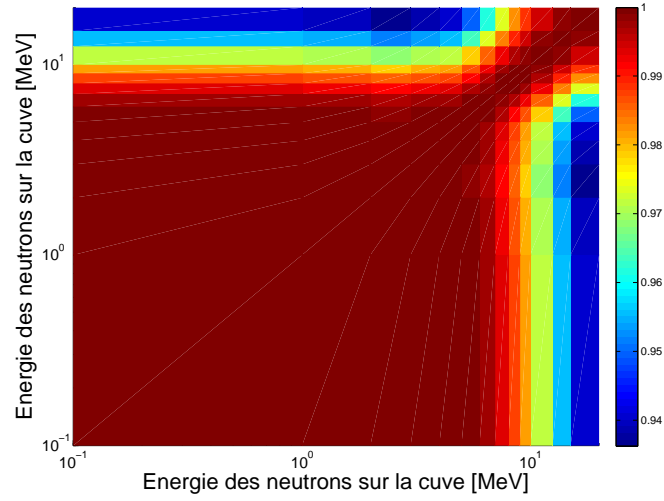


(b) ENDF/B-VII.1

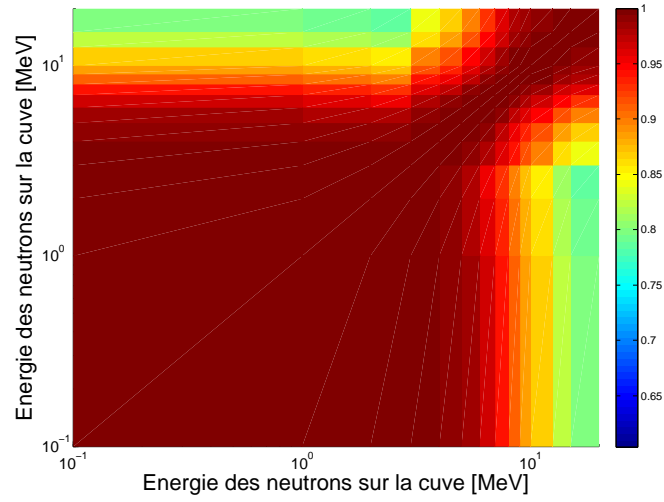


(c) JENDL-4.0

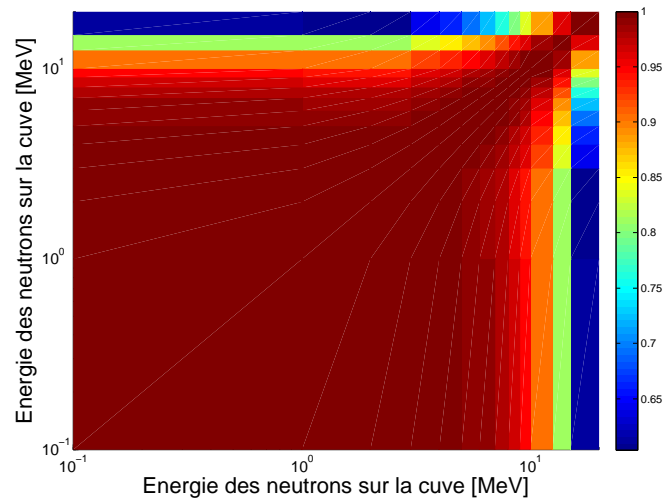
FIGURE 4.13 – Matrices de corrélation des spectres sources (échelle de couleur de -1 à 1)



(a) Madland-Nix (ajusté)



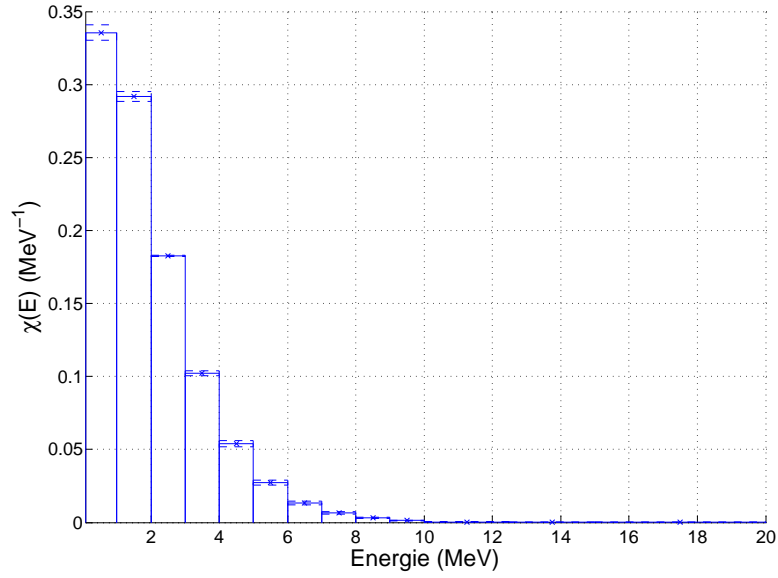
(b) ENDF/B-VII.1



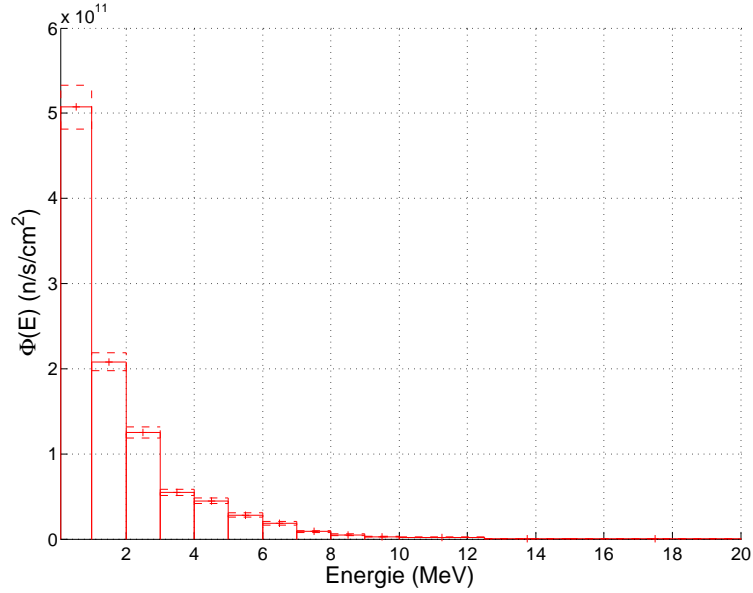
(c) JENDL-4.0

FIGURE 4.14 – Matrices de corrélation des flux à la cuve calculés avec les différents spectres sources (échelle de couleur de 0.6 à 1). 121

Afin d'avoir une représentation plus visuelle du bandeau d'incertitude sur le flux à la cuve, on présente sur la figure 4.15 le spectre source avec son bandeau d'incertitude, ainsi que le flux associé avec son bandeau d'incertitude. La figure ne présente que le cas du spectre de Madland-Nix ajusté.



(a)



(b)

FIGURE 4.15 – (a) Spectre de Madland-Nix ajusté avec son incertitude. (b) Flux à la cuve qui en résulte, avec son incertitude.

Evaluation de $\chi(E)$	Incertitude sur $\Phi(E > 1 \text{ MeV})$ calculé sans corrélations	Incertitude sur $\Phi(E > 1 \text{ MeV})$ calculé avec corrélations
Madland-Nix (ajusté)	2.44%	6.47%
ENDF/B-VII.1	3.87%	1.04%
JENDL-4.0	2.71%	7.28%

TABLE 4.2 – Incertitude sur le flux supérieur à 1 MeV due aux covariances du spectre source, calculée avec et sans tenir compte des corrélations du spectre source.

Enfin, on s’est intéressé à calculer l’incertitude $\Delta\Phi(E > 1 \text{ MeV})$ sur le flux supérieur à 1 MeV, due à l’incertitude sur le spectre source. Afin d’observer l’effet des termes de corrélation du spectre source, on a calculé $\Delta\Phi(E > 1 \text{ MeV})$ d’abord en ne tenant compte que des incertitudes sur le spectre source à chaque énergie, soit la diagonale de la matrice de covariance. Puis on a calculé $\Delta\Phi(E > 1 \text{ MeV})$ en tenant cette fois compte de la matrice de covariance complète du spectre source. Les résultats sont donnés dans la table 4.2. Il n’y a que dans le cas du spectre de ENDF/B-VII.1 que la propagation de la matrice de covariance complète aboutit à une réduction de l’incertitude, par rapport au cas où on ne propage que les termes diagonaux. Dans les deux autres cas étudiés, on peut voir que l’incertitude sur le flux supérieur à 1 MeV est augmentée du fait des termes de corrélation du spectre. Que ce soit dans le sens d’une diminution ou d’une augmentation des incertitudes, on ne peut donc pas négliger les termes de corrélation.

Il s’agit ici d’incertitudes qui résultent de la propagation des covariances sur le spectre source uniquement. Bien sûr, il ne s’agit que d’une partie de l’incertitude. Les autres sources d’incertitude sont l’incertitude statistique du Monte-Carlo (figure 4.6), les incertitudes technologiques, et les incertitudes sur les données nucléaires utilisées, ici celles de JEFF-3.1.1. On peut trouver une étude sur les différentes sources d’incertitude qui interviennent dans la fluence à la cuve dans la référence [36]. On pourra également se référer aux travaux des références [41], [42] et [43], effectués avec TRIPOLI-3 et JEF-2.2, sur l’impact des sections efficaces de transport, ainsi que la sensibilité des taux de réaction neutroniques à seuil au choix du PFNS issu de différentes évaluations internationales. La table 4.3 donne les sources d’incertitude considérées dans les calculs de flux sur la cuve [74].

Nature	Incertitude (%)
Spectre de fission	4.6%
Relation source/puissance	2.2%
Puissance thermique	2.0%
Gradient périphérique	4.1%
Sections efficaces transport	5.5%
ρ , T_{eau}	0.8%
Variation parc (gestion, parc, chargement, <i>burn-up</i> , etc.)	6.4%
Position capsule	4.4%
Incertitude totale	11.7 %

TABLE 4.3 – Sources d’incertitudes considérées dans le calcul du flux sur la cuve [74]

Pour conclure sur l'influence du spectre des neutrons prompts de fission sur le flux à la cuve dans un REP, on constate que celle-ci est grande, et qu'on observe des variations de plusieurs pour-cent entre les flux supérieurs à 1 MeV calculés via différents spectres. On observe aussi que les covariances sur le spectre source aboutissent à une incertitude sur le flux supérieur à 1 MeV allant de 1% à 7% pour les spectres étudiés. Bien qu'il ne s'agisse pas là de la seule ni de la principale source d'incertitude, c'est une contribution non négligeable. Par ailleurs, on a souligné l'importance de considérer la matrice de covariance complète des spectres, et pas seulement les incertitudes. Dans les résultats que l'on a présentés, l'omission des termes non-diagonaux aboutit dans la majorité des cas à une sous-estimation de l'incertitude sur le flux cuve supérieur à 1 MeV.

Dans le cadre de cette thèse, on s'est également intéressé à l'impact du spectre des neutrons de fission sur la pénétration des neutrons de fission dans le sodium, à travers l'expérience JANUS-8 [3]. L'expérience consiste à propager une source de neutrons issus de la fission de l' ^{235}U , induite par neutron thermique. Les neutrons thermiques provenaient du réacteur NES-TOR (Royaume-Uni). La réponse de dosimètres rapides placés au-delà de plusieurs tanks de sodium était mesurée. Les résultats de cette étude faite avec TRIPOLI-4[®] sont présentés dans la référence [5]. Changer le spectre de fission n'a pas permis de conclure sur une amélioration ou non du C/E, en raison des incertitudes expérimentales. La figure 4.16 montre le C/E dans le cas de chaque spectre source.

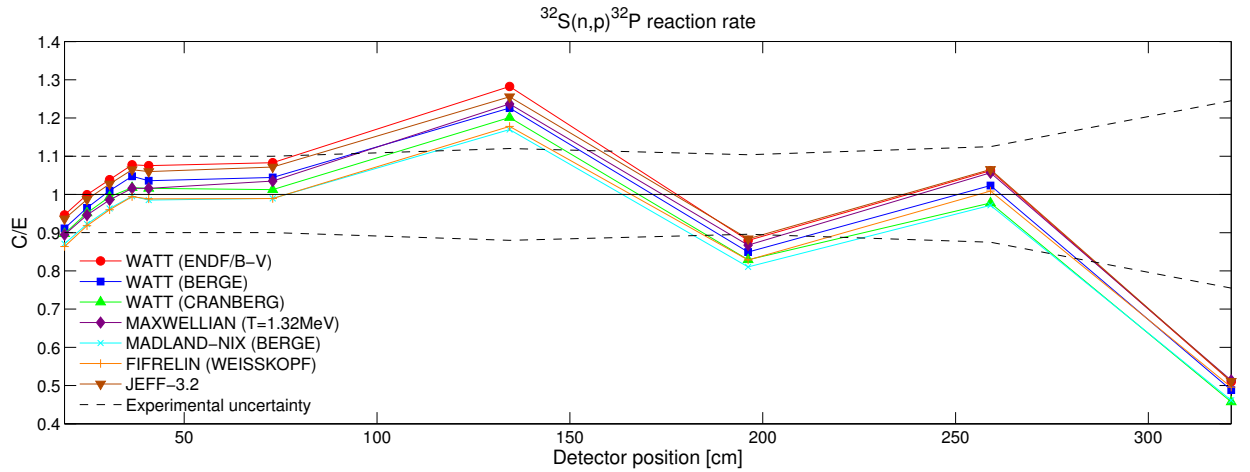


FIGURE 4.16 – Ecart calcul-expérience pour le taux de réaction des détecteurs rapides ^{32}S dans l'expérience JANUS-8 (voir référence [5]).

Conclusion et perspectives

Ces travaux de thèse répondent à un besoin de ré-évaluation des spectres de neutrons prompts de fission pour les principaux isotopes fissiles. En effet, les mesures sont peu nombreuses et souffrent d'incertitudes élevées, notamment dans les ailes du spectre. Plus encore que le spectre lui-même, ce sont les covariances associées qui font le plus défaut. L'évaluation JEFF-3.2 ne comporte pas de données sur les covariances des spectres, bien qu'il en existe dans les évaluations JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1.

Après avoir rappelé les techniques de mesure de spectre et présenté les mesures disponibles, on a présenté les modèles les plus utilisés pour décrire le spectre : la maxwellienne, le modèle de Watt et le modèle de Madland-Nix. Si la maxwellienne et le modèle de Watt n'ont pas de pouvoir prédictif, le modèle de Madland-Nix s'appuie quant à lui sur des considérations statistiques, à travers la théorie de Weisskopf notamment. C'est le modèle utilisé dans les évaluations internationales. On a enfin présenté le code FIFRELIN, développé au CEA Cadarache, qui simule la chaîne de désexcitation des fragments de fission par émission de neutrons et gammas prompts. Ce code vise à prédire les observables de fission en un seul calcul cohérent. Une étude des paramètres de modèle influents sur le spectre, comme la section efficace inverse du modèle de Weisskopf, ou le paramètre de densité de niveaux des fragments, a été menée pour tenter de mieux représenter le spectre. Le spectre est très sensible à ces paramètres, cependant l'écart entre les mesures et le spectre prédit par FIFRELIN reste important.

Dans un deuxième temps, on a présenté le calcul du spectre et de sa matrice de covariance, à travers les trois modèles analytiques (maxwellienne, Watt et modèle de Madland-Nix), en utilisant l'outil CONRAD, également développé au CEA Cadarache. Le calcul consiste à ajuster les paramètres de modèle de façon à reproduire au mieux les mesures. Lors de l'ajustement, une matrice de covariance associée aux paramètres est calculée afin de tenir compte des incertitudes liées à l'information *a priori* sur les paramètres ainsi qu'aux mesures. Seules les incertitudes statistiques sont considérées dans l'ajustement des paramètres. Les incertitudes des paramètres expérimentaux (normalisation et efficacité de détection dépendante de l'énergie) sont propagées après l'ajustement, par une technique de marginalisation. On a présenté les résultats dans le cas de la fission de l' ^{235}U et du ^{239}Pu induite par neutron thermique. Pour le modèle de Madland-Nix, qui est le modèle de référence pour l'évaluation des spectres, l'énergie moyenne des neutrons prompts obtenue est de 1.98 MeV pour l' ^{235}U et de 2.09 MeV pour le ^{239}Pu . Les incertitudes obtenues sont globalement plus faibles que celles des mesures et que celles des évaluations JENDL-4.0 et ENDF/B-VII.1 : elles sont de l'ordre de 1% au-dessous de 2 MeV, et sont plus élevées à haute énergie (environ 20% à 10 MeV). Les incertitudes des évaluations internationales sont plutôt autour de 8% au-dessous de 2 MeV. La matrice de corrélation du spectre présente la forme à deux domaines de corrélations caractéristique d'une grandeur normalisée. On a vu l'importance de disposer d'un grand nombre

de mesures afin d’obtenir un spectre représentatif ainsi que des covariances réalistes sur le spectre calculé. Pour les fissions qui n’ont pas été beaucoup mesurées, comme les fissions induites par neutron rapide, cela pose donc un problème pour la fiabilité de l’évaluation. On a vu d’autre part que les incertitudes de l’expérience sont les plus impactantes sur la matrice de covariance du spectre. Il est donc important d’avoir le plus grand nombre d’information possible sur les conditions de l’expérience et sur les sources d’incertitude associées.

Enfin, on a présenté des calculs de flux neutronique sur la cuve d’un REP, et l’incidence de l’évaluation du PFNS sur ces calculs. Le flux sur la cuve est très sensible au spectre de fission. Les covariances du spectre aboutissent à une incertitude de l’ordre de 6% sur le flux (sans propager d’autre source d’incertitude). Le flux neutronique sur la cuve, en particulier au-dessus de 1 MeV, conditionne les propriétés mécaniques de la cuve au cours de l’irradiation. Le maintien de l’intégrité de la cuve conditionne la durée de fonctionnement du réacteur, car on ne peut pas remplacer la cuve.

Afin de mieux évaluer les spectres de neutrons prompts de fission et leurs covariances, il importe donc d’abord de disposer d’un grand nombre de mesures, ayant des seuils de détection les plus bas possible, et avec une bonne estimation des incertitudes associées. D’autres incertitudes systématiques peuvent être prises en compte dans le calcul des covariances, notamment sur la correction de la diffusion multiple des neutrons dans le dispositif, très influente à basse énergie. Des efforts dans ce sens sont en cours, en particulier à travers le projet ChiNu [26] à LANSCE, qui devrait permettre de mesurer le spectre de fission du ^{239}Pu dans un premier temps, pour une large gamme d’énergie incidente.

Afin d’améliorer l’évaluation du spectre en utilisant le modèle de Madland-Nix, un certain nombre d’ingrédients peuvent être ajoutés au modèle. C’est ce qui a été fait à travers de nombreux travaux, notamment en considérant la dépendance en énergie de la section efficace inverse, ou encore en considérant un paramètre d’anisotropie dans le centre de masse [77], ou en sommant sur toutes les fragmentations possibles [75]. La fission de seconde chance est également à prendre en compte, bien qu’elle soit négligeable pour l’énergie thermique. La méthodologie que l’on propose dans cette thèse pourrait permettre d’obtenir la matrice de covariance associée à ces modèles de Madland-Nix améliorés. D’autre part, le code FIFRELIN pourrait permettre à terme de prédire les observables de fission, notamment le spectre des neutrons prompts, lorsqu’il n’existe pas de mesures, et ce avec la qualité requise pour les évaluations. Enfin, ces modèles ne prennent en compte que les neutrons émis par les fragments totalement accélérés. La modélisation des autres sources potentielles de neutrons prompts, comme les neutrons de scission ou les neutrons émis pendant la phase d’accélération des fragments, pourrait permettre de mieux reproduire les mesures.

Annexe A

Rappels de probabilités et statistiques

Cette annexe reprend les notions de probabilité et statistiques nécessaires pour comprendre la problématique des covariances : comment définir la matrice de covariance d'une variable aléatoire à plusieurs dimensions ou d'un ensemble de variables aléatoires, quelles informations peut-on tirer de cette matrice, et comment propager les covariances. Ces notions interviennent notamment dans le chapitre 3, dans lequel on décrit l'évaluation des covariances des spectres de neutrons prompts de fission.

A.1 Notions de covariance, de corrélation et de variance sous forme matricielle

Prenons deux variables aléatoires X et Y . Cela peut représenter par exemple deux paramètres de modèle, ou bien un même spectre à deux énergies sortantes différentes. On leur associe une fonction densité de probabilité pour les réalisations x et y de ces variables : $p_X(x)$ et $p_Y(y)$. L'espérance mathématique d'une variable est définie comme le premier moment de cette distribution :

$$\mathbb{E}(X) \equiv \int x p_X(x) dx \quad (\text{A.1})$$

et idem pour $\mathbb{E}(Y)$. La covariance $\text{cov}(X, Y)$ de X et Y est définie comme suit :

$$\text{cov}(X, Y) \equiv \mathbb{E}[(X - \mathbb{E}(X))(Y - \mathbb{E}(Y))] \quad (\text{A.2})$$

On a donc $\text{cov}(X, Y) = \text{cov}(Y, X)$. Si X et Y sont indépendantes, alors leur covariance est nulle. Cette grandeur contient deux informations distinctes : l'*incertitude* sur chacune des variables X et Y , et la *corrélation* de X et Y , c'est-à-dire la façon dont X et Y varient conjointement. On définit la variance de X comme le moment centré d'ordre 2 de la distribution $p_X(x)$:

$$\text{Var}(X) \equiv \mathbb{E}[(X - \mathbb{E}(X))^2] = \text{cov}(X, X) \quad (\text{A.3})$$

On obtient $\text{Var}(Y)$ de la même manière. L'écart-type de X , σ_X , est défini par :

$$\sigma_X \equiv \sqrt{\text{Var}(X)} \quad (\text{A.4})$$

et idem pour σ_Y . Lorsque l'on parle d'incertitude sur une variable, on parle généralement de l'« incertitude à 1σ » c'est-à-dire de l'écart-type de cette variable. Il a la même dimension que la variable elle-même, tandis que la covariance et la variance sont homogènes à la variable au carré.

On définit la corrélation de X et Y , $\text{corr}(X, Y)$, comme :

$$\text{corr}(X, Y) \equiv \frac{\text{cov}(X, Y)}{\sigma_X \sigma_Y} \quad (\text{A.5})$$

Cette grandeur sans dimension varie entre -1 (anti-corrélation totale) et 1 (corrélation totale), et on a $\text{corr}(X, Y) = \text{corr}(Y, X)$. La corrélation peut être visualisée de la manière suivante. Plutôt que de considérer une réalisation x de X , raisonnons en termes de réalisations de l'écart ϵ_X de X à son espérance mathématique, soit ϵ_X tel que :

$$x = \mathbb{E}(X) + \epsilon_X \sigma_X \quad (\text{A.6})$$

Chaque réalisation de X s'écarte de $\mathbb{E}(X)$ de ϵ_X fois son écart-type. De même on définit ϵ_Y tel que $y = \mathbb{E}(Y) + \epsilon_Y \sigma_Y$. Alors, on déduit directement des équations A.2 et A.5 :

$$\text{corr}(X, Y) = \mathbb{E}(\epsilon_X \epsilon_Y) \quad (\text{A.7})$$

C'est ce qui est illustré sur le schéma de la figure A.1. La covariance de deux variables ne suffit pas dans le cas général à connaître leur distribution conjointe $p_{XY}(X, Y)$, c'est-à-dire la loi qui régit comment ces deux variables varient conjointement. En effet, la covariance est seulement le moment d'ordre 2 de cette distribution. Cependant, lorsque $p_{XY}(X, Y)$ est gaussienne, comme c'est le cas le plus souvent, les deux premiers moments suffisent pour caractériser toute la distribution.

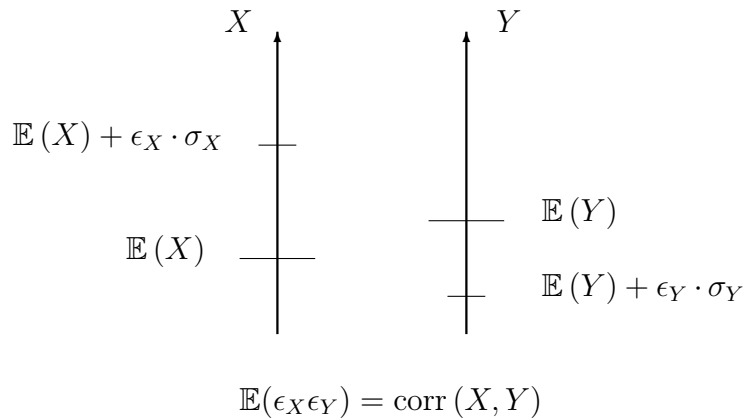


FIGURE A.1 – Représentation de la variation de deux variables aléatoires X et Y . Chaque réalisation de X (resp. de Y) s'écarte de son espérance mathématique d'un certain écart ϵ_X (resp. ϵ_Y) fois son écart-type. L'espérance mathématique pour le produit des écarts correspond à la corrélation de X et Y .

Soit une grandeur \vec{x} de dimension n , par exemple un ensemble de n paramètres. On définit sa matrice de covariance (quelquefois appelée matrice de variance-covariance), M_x , de façon à ce que ses éléments s'expriment comme suit :

$$M_x^{i,j} = \text{cov}(x_i, x_j) \quad (\text{A.8})$$

M_x est toujours symétrique, et définie positive. On a :

$$M_x = \begin{pmatrix} \sigma_{x_1}^2 & \text{cov}(x_1, x_2) & \cdots & \text{cov}(x_1, x_n) \\ \text{cov}(x_2, x_1) & \sigma_{x_2}^2 & \cdots & \text{cov}(x_2, x_n) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \text{cov}(x_n, x_1) & \text{cov}(x_n, x_2) & \cdots & \sigma_{x_n}^2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.9})$$

De cette seule matrice, on déduit deux informations : la diagonale nous donne les variances, et donc l'incertitude sur chaque variable :

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} \sigma_{x_1} \\ \sigma_{x_2} \\ \vdots \\ \sigma_{x_n} \end{pmatrix} \quad (\text{A.10})$$

et les éléments non-diagonaux divisés par les écarts-type comme dans l'équation A.5 nous donnent la matrice de corrélation des paramètres :

$$C_x = \begin{pmatrix} 1 & \text{corr}(x_1, x_2) & \cdots & \text{corr}(x_1, x_n) \\ \text{corr}(x_2, x_1) & 1 & \cdots & \text{corr}(x_2, x_n) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \text{corr}(x_n, x_1) & \text{corr}(x_n, x_2) & \cdots & 1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.11})$$

Cas de la loi gaussienne ou loi normale

Lorsque l'on ne connaît pas la distribution d'une variable physique, l'hypothèse la plus réaliste est de considérer une loi gaussienne. Celle-ci s'exprime en fonction de sa valeur centrale μ et de sa largeur σ . Pour un paramètre dont le domaine de variation est $]-\infty, +\infty[$, elle s'écrit :

$$\mathcal{G}(X) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-(X-\mu)^2/2\sigma^2} \quad (\text{A.12})$$

L'espérance mathématique de cette distribution est :

$$\mathbb{E}(X) = \int_{-\infty}^{+\infty} X \cdot \mathcal{G}(X) \cdot dX = \mu \quad (\text{A.13})$$

n	$P(X - \mu < n\sigma)$
1	68.27%
2	95.45%
3	99.73%
4	99.99%
...	...

TABLE A.1 – Probabilité d’être dans l’intervalle de confiance à n sigma, pour une variable ayant une distribution de probabilité gaussienne (équation A.15)

Dans le cas de cette distribution, il s’agit également de la valeur la plus probable pour X . La variance de la distribution est :

$$\text{Var}(X) = \int_{-\infty}^{+\infty} (X - \mu)^2 \cdot \mathcal{G}(X) \cdot dX = \sigma^2 \quad (\text{A.14})$$

La largeur σ est donc l’écart-type de la distribution. Pour une loi de probabilité gaussienne, la connaissance des deux premiers moments est suffisante pour caractériser la loi de probabilité. Avec cette distribution gaussienne, la probabilité que X ne s’écarte pas de son espérance de plus de n fois son écart-type est :

$$P(X - \mu < n\sigma) = \int_{\mu - n\sigma}^{\mu + n\sigma} \mathcal{G}(X) dX = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{n/\sqrt{2}} e^{-u^2} du \quad (\text{A.15})$$

où on a fait le changement de variable $u = (X - \mu) / (\sigma\sqrt{2})$ et où on utilise la symétrie de la distribution $\mathcal{G}(\mu - X) = \mathcal{G}(\mu + X)$. La résolution numérique de l’intégrale gaussienne nous donne la probabilité de se trouver dans l’intervalle de confiance à n sigma (voir table A.1). On peut aussi remarquer que c’est pour $X = \mu \pm \sigma$ que la courbure de la distribution s’inverse (la dérivée seconde change de signe).

Une autre propriété de la gaussienne est qu’elle reste gaussienne sous une transformation linéaire. Soit Y une variable de X telle que $Y = aX + b$, X suit une loi gaussienne de valeur centrale μ_X et de largeur σ_X . Alors Y suit également une loi gaussienne, de valeur centrale $\mu_Y = a\mu_X + b$ et de largeur $\sigma_Y = a\sigma_X$.

A.2 Propagation des covariances

Prenons notre jeu \vec{x} de n paramètres, et sa matrice de covariance M_x . On considère maintenant une fonction $t(E, \vec{x})$ de l’énergie et de \vec{x} . On considère une grille de m points (ou groupes) en énergie, on a donc m valeurs de t . La fonction en chaque valeur (ou groupe) en énergie est considérée comme une variable aléatoire ayant sa propre distribution. La matrice de covariance M de cette fonction est définie telle que $M^{i,j} = \text{cov}(t_i, t_j)$ où t_i (resp. t_j) est la valeur de la fonction au i -ème (resp. j -ème) point ou groupe en énergie. Au premier ordre, la matrice de covariance M de t , due aux covariances des paramètres \vec{x} , est donnée par :

$$M = G M_x G^T \quad (\text{A.16})$$

où G est une matrice $(m \times n)$ qui contient les dérivées de la fonction aux paramètres :

$$G^{i,j} = \frac{\partial t_i}{\partial x_j} \quad (\text{A.17})$$

La relation A.16 est une relation générale pour la propagation des covariances au premier ordre. Elle est souvent désignée par le terme « formule du sandwich », qui vient de sa forme matricielle. Elle provient d'un développement de Taylor de t à l'ordre 1 autour des espérances des paramètres \vec{x} . On fait donc l'hypothèse, valable pour la majorité des systèmes physiques, que l'on ne fait pas une grosse erreur en considérant que t dépend des x_i de façon linéaire. Cela nous donne la covariance entre les i -ème et j -ème valeurs de t :

$$\text{cov}(t_i, t_j) = \sum_{k=1}^n \sum_{l=1}^n \text{cov}(x_k, x_l) \cdot \frac{\partial t_i}{\partial x_k} \cdot \frac{\partial t_j}{\partial x_l} \quad (\text{A.18})$$

Si les paramètres \vec{x} ne sont pas corrélés les uns aux autres, i.e. M_x est diagonale, et qu'on veut connaître la variance de chaque valeur de t , on a :

$$\Delta t_i^2 = \text{cov}(t_i, t_i) = \sum_{k=1}^n \Delta x_k^2 \left(\frac{\partial t_i}{\partial x_k} \right)^2 \quad (\text{A.19})$$

qui est une formule bien connue, où on a noté Δt_i (resp. Δx_k) l'écart-type de t_i (resp. de x_k). Cependant, elle ne nous donne pas d'information sur les corrélations entre les valeurs de t qui peuvent exister même lorsque M_x est diagonale. De plus, elle ne tient pas compte d'éventuelles corrélations entre les paramètres \vec{x} . C'est pourquoi on utilisera toujours la propagation matricielle des covariances (relation A.16).

Annexe B

Le PFNS dans les évaluations internationales : les contraintes du format ENDF

Il existe plusieurs compilations, ou « librairies », de données nucléaires évaluées, en vue d'applications diverses pour la science et la technologie. Le format ENDF-6, pour « Evaluated Nuclear Data Files », est le format international de référence pour ces librairies évaluées. Il garantit une certaine cohérence entre les évaluations, et permet aussi d'utiliser les mêmes codes de post-processing pour traiter les données nucléaires extraites de ces librairies, ce qui garantit une comparaison directe entre elles. En effet, le format ENDF n'est pas conçu pour être explicite à la lecture, mais pour contenir toute l'information nécessaire avec le moins de redondances possible. Pour la plupart des données, un certain nombre de procédures de mise en forme est donc nécessaire pour lire le fichier évalué.

Il existe en particulier trois principales librairies évaluées au format ENDF : ENDF/B-VII [14], principalement américaine, dont la dernière version, ENDF/B-VII.1 a été publiée en 2011. JEFF-3 [53], qui est un projet international coordonné par la NEA, et dont la dernière version, JEFF-3.2, a été publiée en mars 2014. Et enfin JENDL-4 [64], la librairie japonaise, dont la dernière version, JENDL-4.0, date de 2010.

Le code de référence pour la lecture et l'écriture au format ENDF, mais aussi pour tout le traitement à appliquer aux données nucléaires extraites (formatage, élargissement Doppler des sections efficaces, tests physiques, etc.), est le code NJOY [46] écrit en Fortran et maintenu par le LANL (USA). Cependant, pour ce qui concerne les PFNS et leurs covariances, les procédures à appliquer sont relativement basiques : interpolations, mise en groupes, etc., et on peut donc les automatiser sans utiliser NJOY. C'est ce que nous avons fait pour les besoins de cette thèse, à travers l'écriture d'un utilitaire en C++, pour la lecture, l'écriture et la mise en forme des spectres et de leurs covariances. Ceci offre l'avantage d'être plus transparent que NJOY : il n'est par exemple pas possible avec NJOY de visualiser les données évaluées dans leur format d'origine (grilles en énergie incidente et sortante).

B.1 Structure de la librairie évaluée

L'évaluation d'une donnée nucléaire comporte dans l'idéal deux informations : la valeur moyenne, et les covariances qui sont associées à cette valeur. La nécessité d'avoir les covariances au format ENDF s'est développée plus lentement que le besoin d'avoir les valeurs moyennes ; ce qui fait que le format prévoit que les valeurs et leurs covariances soient données indépendamment les unes des autres, sans nécessité de cohérence entre elles. C'est ce qu'on verra plus loin. Une description complète du format pourra être trouvée dans le manuel ENDF [29]. Nous rappellerons ici très brièvement la structure générale d'une évaluation avant de nous concentrer sur le cas précis des spectres de neutrons prompts de fission.

Un fichier évalué concerne un seul isotope. Le format attribue à chaque isotope un identifiant unique, par exemple l' ^{235}U possède l'identifiant 9228. Nous nous concentrerons ici sur les fichiers qui concernent les réactions induites par neutron (*neutron data*), car ce sont eux qui contiennent les données relatives à la fission induite par neutron. Pour un isotope donné, il existe aussi d'autres fichiers, par exemple celui des données de décroissance (*decay data*), dans lequel on trouvera les informations relatives à la fission spontanée.

L'évaluation d'un isotope est divisée en plusieurs *files* désignées par un numéro MF, dédiées chacune à une grandeur, par exemple MF = 5 correspond à la distribution énergétique des particules secondaires dans une réaction induite par neutron. Chaque *file* est divisée en plusieurs sous-fichiers désignés par un numéro MT, qui correspond à la nature de la réaction. Par exemple, MT = 18 désigne la fission induite par neutron. Le spectre des neutrons prompts de fission est donc placé dans la *file* MF = 5, MT = 18.

B.2 Structure de la *file* 5 18

La PFNS au format ENDF est donné en **ponctuel**, c'est-à-dire qu'on attribue une valeur de spectre à chaque valeur d'énergie. Le format prévoit plusieurs fonctionnelles habituelles pour exprimer le PFNS : maxwellienne, spectre de Watt, spectre de Madland-Nix, spectres d'évaporation. Dans ce cas, seuls les paramètres de la fonctionnelle sont renseignés. Lorsque le PFNS n'est pas un de ces modèles, on peut aussi le donner sous forme de valeurs tabulées : on donne alors NF couples $\{E, \chi(E)\}$.

Dans le cas de la fission induite par neutron, le PFNS est une matrice : le spectre dépend de l'énergie du neutron incident. L'énergie incidente est également ponctuelle : on donne un spectre pour chaque valeur de l'énergie incidente. Pour simplifier, le schéma de la Figure B.1 montre la structure d'une file 5 18 dans laquelle le PFNS est exprimé en tabulé à toutes les énergies incidentes. Le format indique aussi comment interpoler entre les énergies incidentes et entre les énergies sortantes — il s'agit presque toujours d'une interpolation lin-lin dans les deux cas. Il n'y a donc pas d'ambiguïté pour l'extraction d'un PFNS à n'importe quelles énergies incidente et sortante.

<p>Energie incidente E_i^0 : Description des NF_0 couples de valeurs $\{E, \chi(E_i^0, E)\}$</p> <p>Energie incidente E_i^1 : Description des NF_1 couples de valeurs $\{E, \chi(E_i^1, E)\}$</p> <p>...</p> <p>Energie incidente E_i^{NE-1} : Description des NF_{NE-1} couples de valeurs $\{E, \chi(E_i^{NE-1}, E)\}$</p>
--

FIGURE B.1 – Représentation simplifiée de la structure de la *file* 5 18 (cas où le PFNS est donné sous forme de valeurs tabulées à toutes les énergies incidentes)

B.3 Structure de la *file* 35 18

La *file* MF = 35 (covariances des distributions données dans la *file* 5), MT = 18 (fission) donne les covariances associées aux PFNS. Contrairement au PFNS donné dans la *file* 5 18 où les énergies incidentes et sortantes sont ponctuelles, les covariances dans la *file* 35 18 sont **multigroupes**. On associe donc une matrice de covariance multigroupe à chaque groupe d'énergie incidente. Le schéma de la Figure B.2 résume la structure de la *file* 35 18.

Description du nombre NE de valeurs d'énergie incidentes $\{E_i\}$ qui forment $NE - 1$ groupes
<p>Groupe 0 d'énergie incidente : Description des NF_0 valeurs de l'énergie sortante $\{E\}$ qui forment $NF_0 - 1$ groupes Description de la matrice de covariance $(NF_0 - 1) \times (NF_0 - 1)$</p> <p>Groupe 1 d'énergie incidente : Description des NF_1 valeurs de l'énergie sortante $\{E\}$ qui forment $NF_1 - 1$ groupes Description de la matrice de covariance $(NF_1 - 1) \times (NF_1 - 1)$</p> <p>...</p> <p>Groupe $NE - 2$ d'énergie incidente : Description des NF_{NE-2} valeurs de l'énergie sortante $\{E\}$ qui forment $NF_{NE-2} - 1$ groupes Description de la matrice de covariance $(NF_{NE-2} - 1) \times (NF_{NE-2} - 1)$</p>

FIGURE B.2 – Représentation simplifiée de la structure de la *file* 35 18

Il est à noter que les grilles en énergie, que ce soit pour l'énergie incidente ou pour l'énergie sortante, sont **indépendantes de celles de la *file* 5 18**.

Au format ENDF, les covariances sont exprimées en absolu, et non pas relativement au spectre lui-même. Il faut donc être prudent sur la définition de ces covariances et sur ce à quoi elles se rapportent. Définissons quelles sont les quantités qui peuvent être utilisées pour décrire le spectre, à l'énergie sortante E , dans le référentiel du laboratoire.

1. Le **spectre ponctuel** $\chi(E)$ est la distribution de probabilité normalisée, en eV^{-1} , pour l'énergie sortante E . On a :

$$\int_0^{\infty} \chi(E) \, dE = 1 \quad (\text{B.1})$$

2. Le **spectre multigroupe** χ_k est la distribution de probabilité, en eV^{-1} , pour l'énergie sortante $E \in k$. On a :

$$\chi_k = \frac{1}{\Delta E_k} \int_{E \in k} \chi(E) \, dE \quad \sum_{k=1}^{\infty} \chi_k \Delta E_k = 1 \quad (\text{B.2})$$

où ΔE_k est la largeur du groupe k en eV .

3. Le **rendement spectral** Y_k est la probabilité, sans dimension, que l'énergie sortante E soit dans k . On a :

$$Y_k = \int_{E \in k} \chi(E) \, dE = \chi_k \Delta E_k \quad \sum_{k=1}^{\infty} Y_k = 1 \quad (\text{B.3})$$

Les covariances au format ENDF sont celles sur les rendements multigroupes Y_k . Les éléments de matrice au format ENDF sont notés $\mathcal{F}_{kk'}$, et on a $\mathcal{F}_{kk'} = \text{cov}(Y_k, Y_{k'})$, et donc :

$$\text{cov}(\chi_k, \chi_{k'}) = \frac{\mathcal{F}_{kk'}}{\Delta E_k \cdot \Delta E_{k'}} \quad (\text{B.4})$$

Pour une énergie incidente donnée E_i , il suffit de trouver le groupe g_i auquel elle appartient pour obtenir la matrice de covariance multigroupe associée. Pour obtenir les covariances sur le spectre ponctuel, le format précise que :

$$\text{cov}(\chi(E_i), \chi(E_j)) = \text{cov}(\chi_k, \chi_{k'}) \quad (\text{B.5})$$

avec $E_i \in k$ et $E_j \in k'$. Pour obtenir les covariances multigroupes sur une autre grille multigroupe que celle spécifiée dans l'évaluation, NJOY propose une méthode pour se rapporter à la nouvelle grille, en passant par l'union des deux grilles. La méthode est exposée dans le chapitre sur le module ERRORR du manuel NJOY [46]. Elle a été implémentée dans notre utilitaire.

B.4 Correspondance entre le PFNS et ses covariances dans l'évaluation

B.4.1 Du point de vue de l'utilisateur

On a vu que le PFNS est donné de façon ponctuelle et les covariances de façon multigroupe. Afin d'associer aux PFNS de la *file* 5 les covariances de la *file* 35, deux choix s'offrent donc à l'utilisateur : exprimer le PFNS et ses covariances en ponctuel ou en multigroupe.

Dans le cas ponctuel, on a vu qu'il est facile d'exprimer la matrice de covariance donnée en *file* 35 sur la grille ponctuelle de la *file* 5. Dans le cas multigroupe, on procédera à une simple mise en groupes du PFNS de la *file* 5 sur la grille de la *file* 35. Ce faisant, on perd une partie de l'information donnée en *file* 5. Il est donc préférable de choisir une extraction en mode ponctuel.

B.4.2 Du point de vue de l'évaluateur

En pratique, l'évaluateur connaît les covariances associées à ses valeurs de spectres (ponctuel ou multigroupe) sur la même grille que le spectre lui-même. Il devra cependant exprimer le spectre en ponctuel et les covariances en multigroupe.

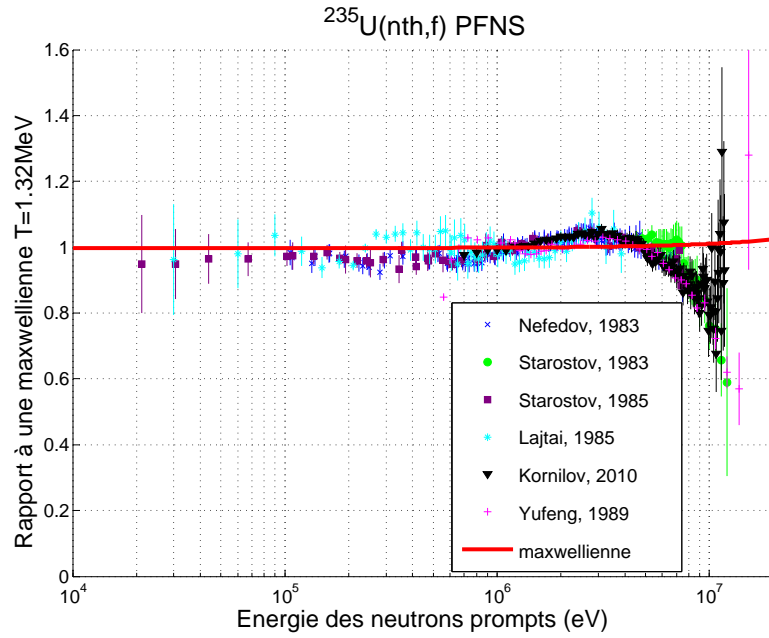
Dans le cas où l'on dispose du PFNS et de ses covariances en multigroupe sur une grille à $N - 1$ groupes définie par N points, une manière de garder la cohérence est de choisir pour le PFNS la grille ponctuelle de $N - 1$ points définis par la valeur centrale de chaque groupe. Dans le cas où l'on dispose des informations en ponctuel, on pourra mettre les covariances en groupe — dans notre cas c'est le code CONRAD (voir chapitre 3) qui s'en chargera, en choisissant une grille multigroupe de façon à ce que chaque point de la grille ponctuelle soit la valeur centrale d'un groupe.

Annexe C

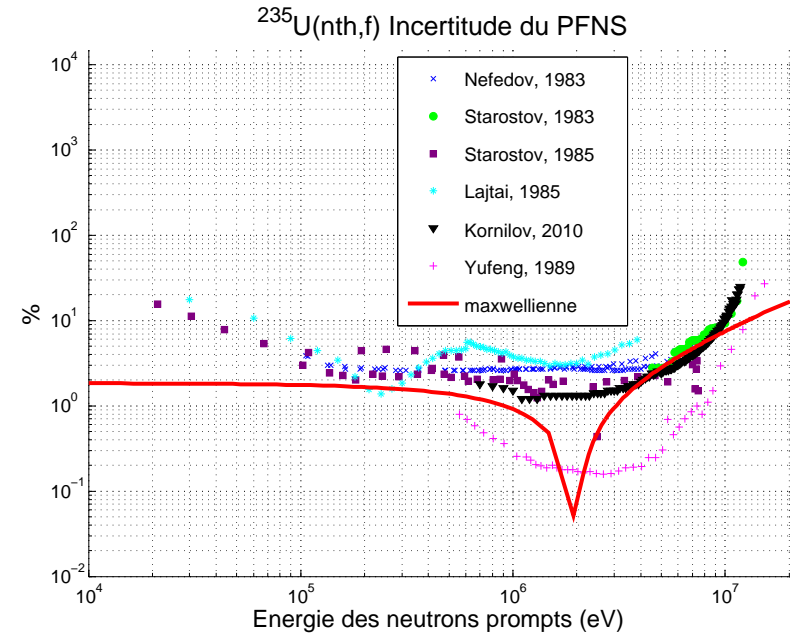
Résultats additionnels

C.1 Spectre et matrice de covariance associée pour les modèles maxwellien et de Watt

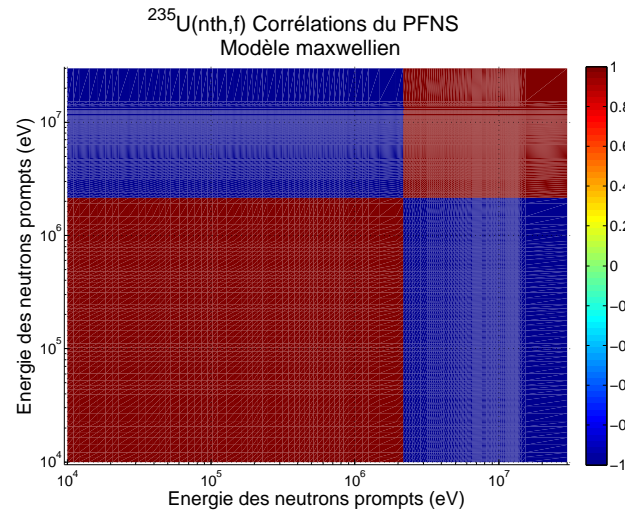
Voici le résultat des calculs d'ajustements présentés dans le chapitre 3 des modèles maxwellien et de Watt via CONRAD. On présente ici les ajustements sur les données pour la fission de l' ^{235}U induite par neutron thermique, et pour celle du ^{239}Pu induite par neutron thermique. Les calculs prennent en compte l'incertitude de normalisation de chaque expérience via la marginalisation. L'incertitude sur l'efficacité de détection est également marginalisée lorsqu'on peut l'estimer ; c'est le cas pour les expériences de Kornilov *et al.* de 2010 et de Yufeng *et al.* de 1989 pour la fission thermique de l' ^{235}U . Les paramètres ajustés avec leurs covariances, dont sont issus les spectres présentés, apparaissent au chapitre 3 dans les tables 3.1 et 3.2.



(a)

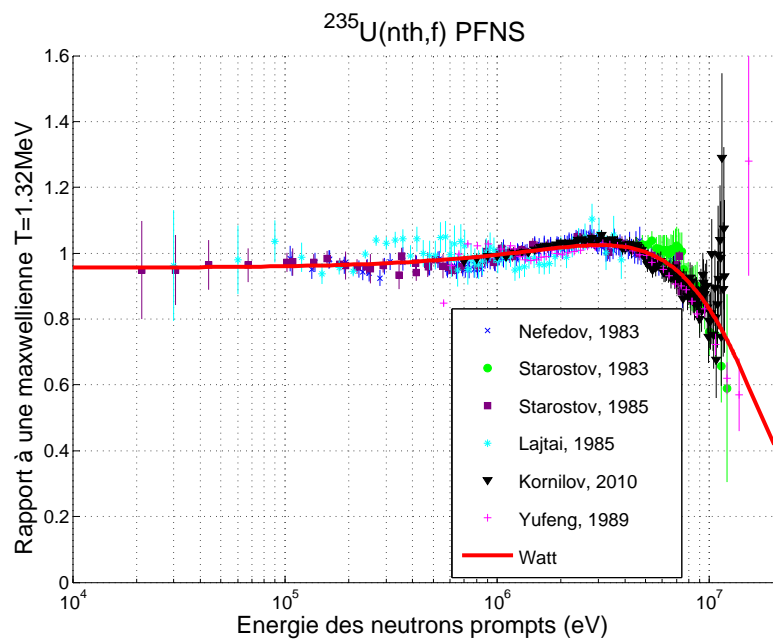


(b)

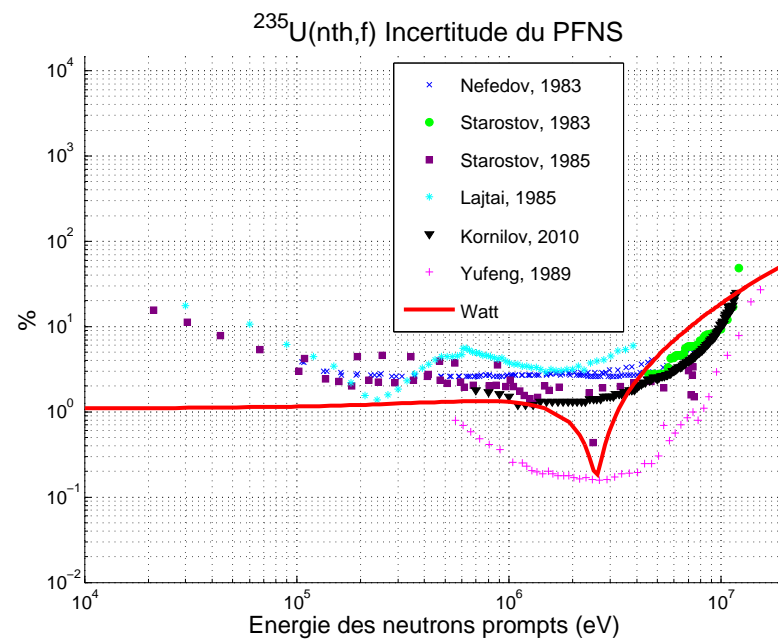


(c)

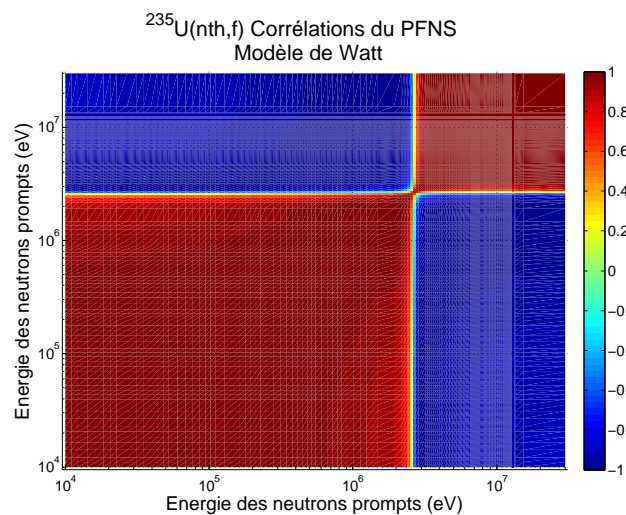
FIGURE C.1 – Résultat du calcul pour $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ en marginalisant l'incertitude de normalisation et l'incertitude d'efficacité de détection, pour le modèle maxwellien.



(a)

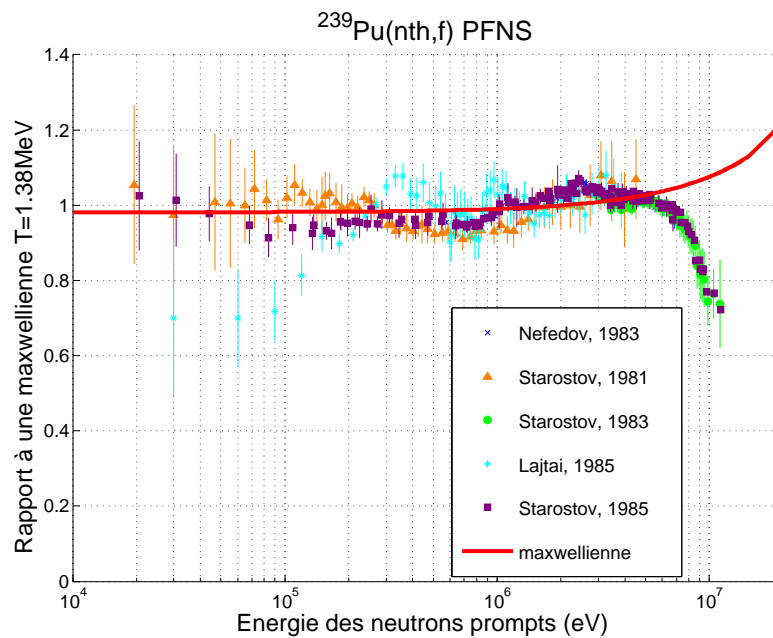


(b)

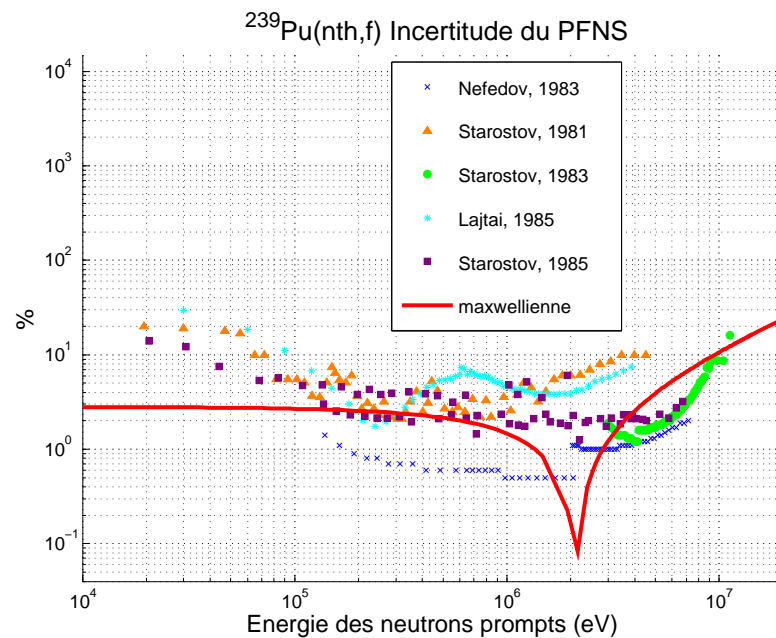


(c)

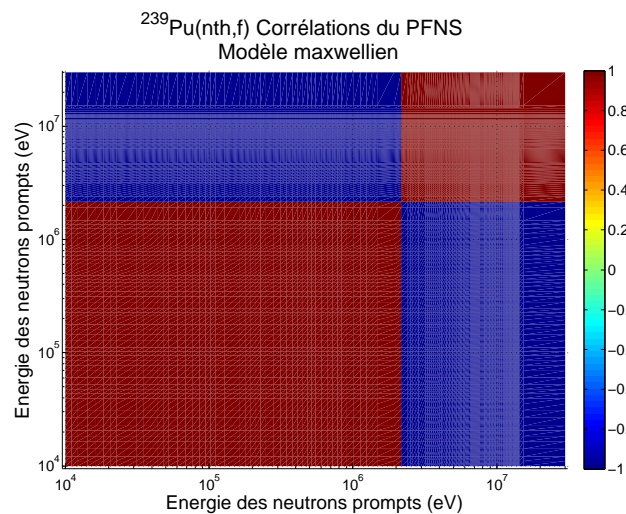
FIGURE C.2 – Résultat du calcul pour $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ en marginalisant l'incertitude de normalisation et l'incertitude d'efficacité de détection, pour le modèle de Watt.



(a)

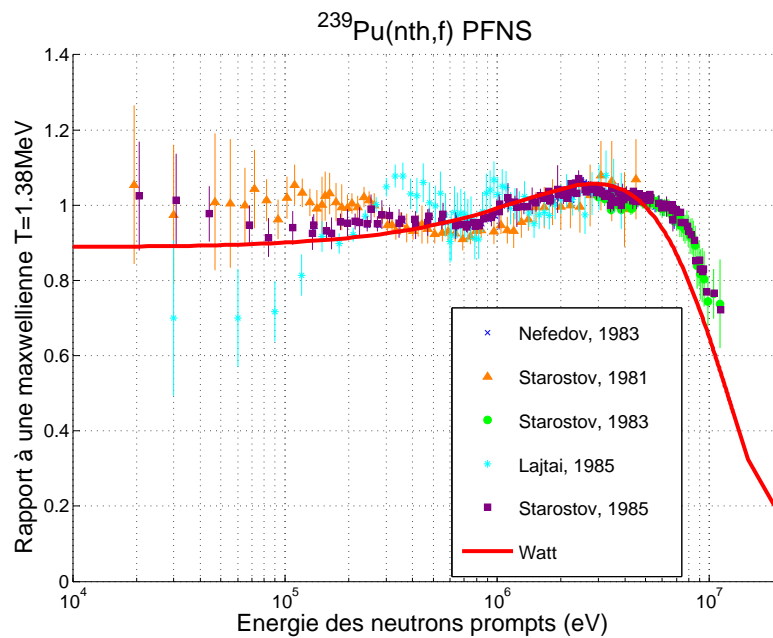


(b)

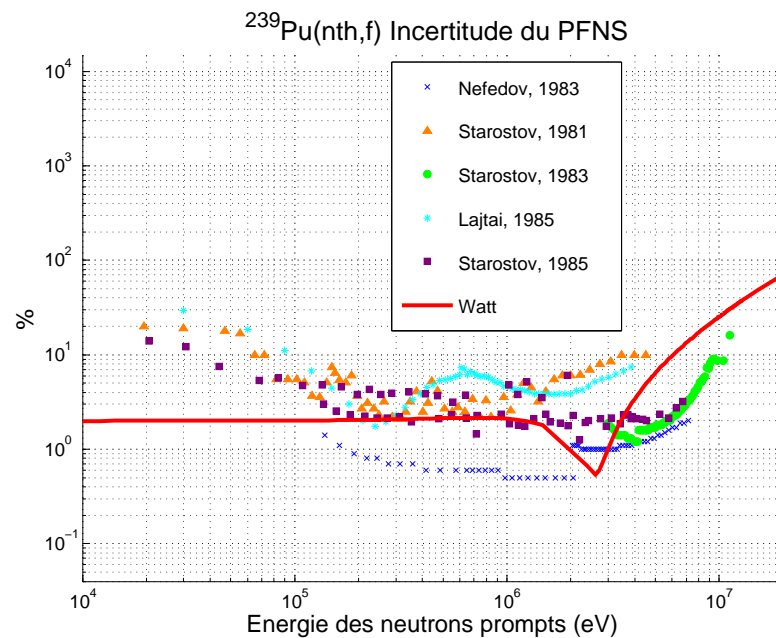


(c)

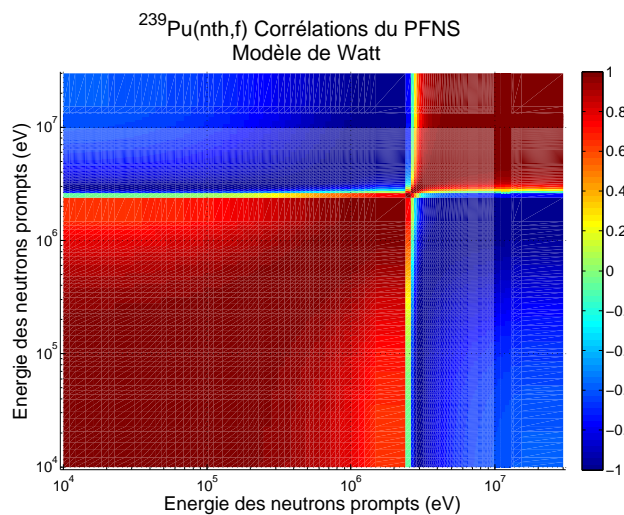
FIGURE C.3 – Résultat du calcul pour $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ en marginalisant l'incertitude de normalisation, pour le modèle maxwellien.



(a)



(b)



(c)

FIGURE C.4 – Résultat du calcul pour $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ en marginalisant l'incertitude de normalisation, pour le modèle de Watt.

C.2 Propagation des spectres maxwellien et de Watt et de leurs covariances

Dans le chapitre 4, on présente le résultat de la propagation des covariances du PFNS au flux sur la cuve d'un réacteur REP. On présente ici les résultats associés aux spectres maxwellien et de Watt. La figure C.5 présente l'incertitude relative sur les spectres condensés en groupes, maxwellien et de Watt ; la figure C.6 montre l'incertitude relative sur le flux à la cuve calculé avec ces spectres. Sur la figure C.7 sont représentées les matrices de corrélations, condensées en groupes, de ces spectres. Enfin, on présente sur la figure C.8 les matrices de corrélations des flux cuve associés.

Comme on l'a vu au chapitre 4, les neutrons émis avec une énergie à 1 MeV ne contribuent pas au flux sur la cuve. Seule la partie supérieure à 1 MeV de la matrice de corrélation du spectre source impacte la matrice de corrélation du flux cuve. Dans le cas de la maxwellienne, au-dessus de 1 MeV, tous les neutrons sont corrélés à 1. La matrice de corrélation du flux associé est alors totalement corrélée à 1, sur tout le domaine énergétique. Dans le cas du spectre de Watt, les corrélations entre les énergies sources sont proches de 1, on obtient donc une matrice de corrélation du flux avec une très forte corrélation positive sur tout le domaine énergétique.

La table C.1 présente les flux intégrés au-dessus de 1 MeV dus à ces deux spectres, en rappelant le flux dû aux autres spectres présentés dans le chapitre 4.

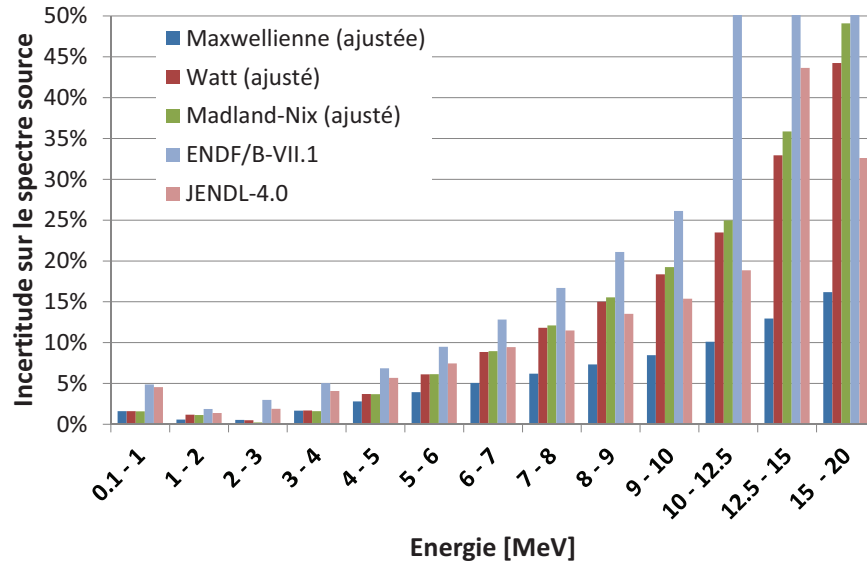


FIGURE C.5 – Incertitude sur les spectres sources condensés. Les spectres présentés au chapitre 4 sont également rappelés. L'échelle est tronquée à 50% d'incertitude afin d'avoir une bonne visibilité sur les incertitudes sur les groupes de basse énergie.

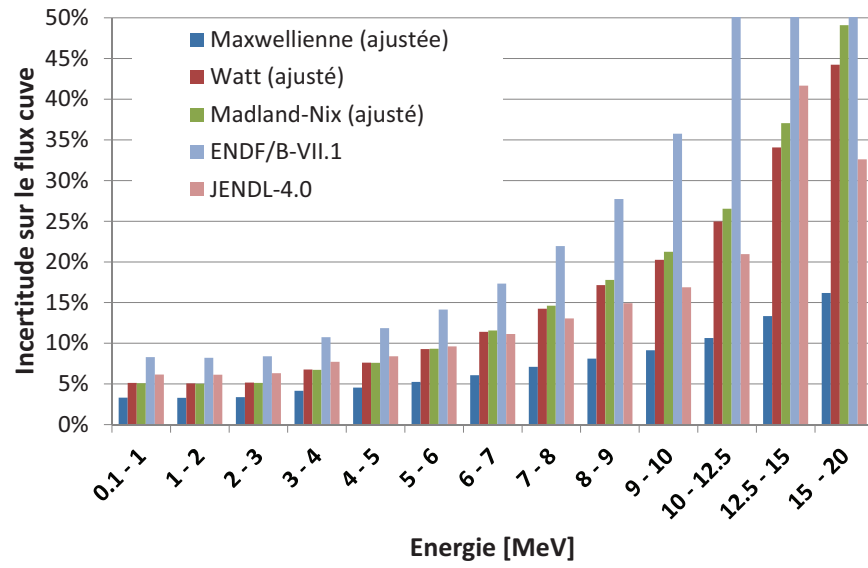


FIGURE C.6 – Incertitude sur les flux sur la cuve résultant des différents spectres source. L'échelle est tronquée à 50% d'incertitude afin d'avoir une bonne visibilité sur les incertitudes sur les groupes de basse énergie.

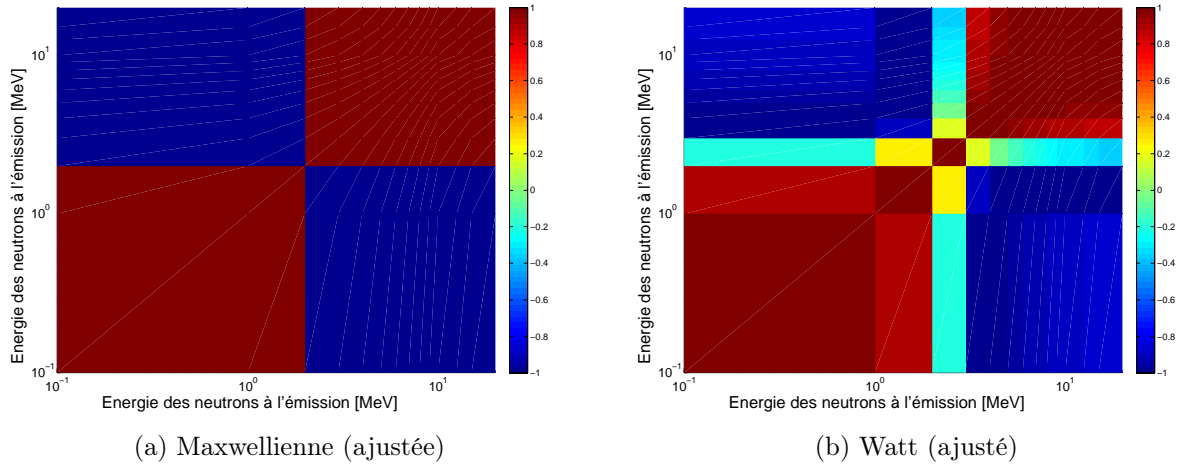


FIGURE C.7 – Matrices de corrélation des spectres maxwellien et de Watt

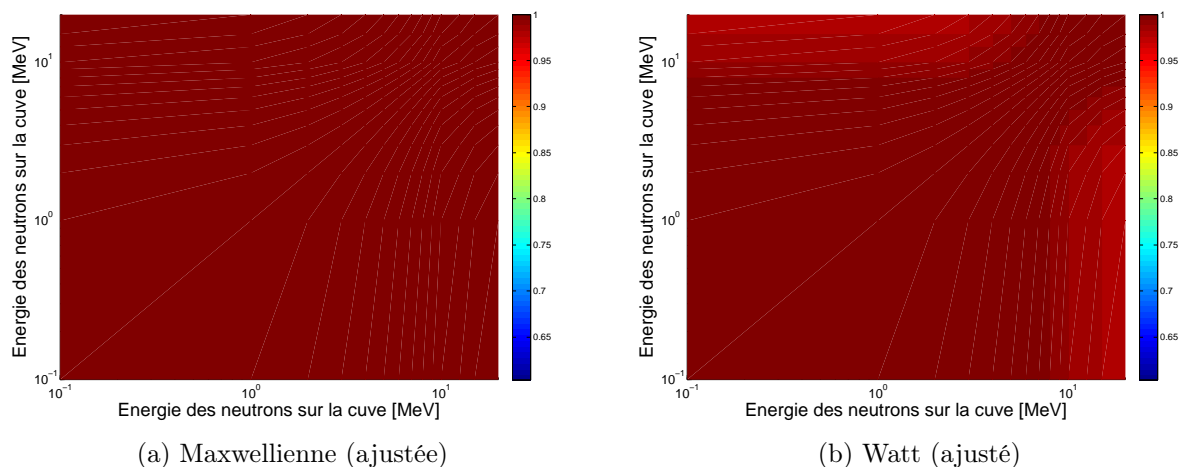


FIGURE C.8 – Matrices de corrélation des flux à la cuve calculés avec les spectres maxwellien et de Watt.

Evaluation de $\chi(E)$	Incertitude sur $\Phi(E > 1 \text{ MeV})$ calculé sans corrélations	Incertitude sur $\Phi(E > 1 \text{ MeV})$ calculé avec corrélations
Maxwellienne (ajustée)	1.44%	3.98%
Watt (ajusté)	2.43%	6.50%
Madland-Nix (ajusté)	2.44%	6.47%
ENDF/B-VII.1	3.87%	1.04%
JENDL-4.0	2.71%	7.28%

TABLE C.1 – Incertitude sur le flux supérieur à 1 MeV dû aux covariances du spectre source, calculée avec et sans tenir compte des corrélations du spectre source.

Annexe D

Publications

Cette annexe retranscrit les deux articles qui ont été publiés dans le cadre de cette thèse, et qui concernent exclusivement ces travaux. Le premier article a été présenté lors du « 15th International Symposium on Reactor Dosimetry », IRSD-15, organisé par le *European Working Group on Reactor Dosimetry* (EWGRD) et hébergé par le CEA, qui s'est tenu à Aix-en-Provence du 18 au 23 mai 2014. Le deuxième a été présenté lors de la conférence THEORY-3, co-organisée par le JRC-IRMM (Belgique) et le NIPNE de Bucarest (Roumanie), et qui a eu lieu à Opatija (Croatie), du 16 au 18 septembre 2014.



FIGURE D.1 – Conférence THEORY-3 à Opatija (Croatie). ©EU, 2014

Estimation of covariances on Prompt Fission Neutron Spectra and impact of the PFNS model on the vessel fluence

Léonie Berge^{1,a}, Olivier Litaize¹, Olivier Serot¹, Pascal Archier¹, Cyrille De Saint Jean¹, Yannick Pénéliou¹, and David Regnier¹

¹CEA, DEN, DER, SPRC, Cadarache, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France

Abstract. As the need for precise handling of nuclear data covariances grows ever stronger, no information about covariances of prompt fission neutron spectra (PFNS) are available in the evaluated library JEFF-3.2, although present in ENDF/B-VII.1 and JENDL-4.0 libraries for the main fissile isotopes. The aim of this work is to provide an estimation of covariance matrices related to PFNS, in the frame of some commonly used models for the evaluated files, such as the Maxwellian spectrum, the Watt spectrum, or the Madland-Nix spectrum. The evaluation of PFNS through these models involves an adjustment of model parameters to available experimental data, and the calculation of the spectrum variance-covariance matrix arising from experimental uncertainties. We present the results for thermal neutron induced fission of ^{235}U . The systematic experimental uncertainties are propagated via the marginalization technique available in the CONRAD code. They are of great influence on the final covariance matrix, and therefore, on the spectrum uncertainty band width. In addition to this covariance estimation work, we have also investigated the importance on a reactor calculation of the fission spectrum model choice. A study of the vessel fluence depending on the PFNS model is presented. This is done through the propagation of neutrons emitted from a fission source in a simplified PWR using the TRIPOLI-4[®] code. This last study includes thermal fission spectra from the FIFRELIN Monte-Carlo code dedicated to the simulation of prompt particles emission during fission.

1 Introduction

For reactor calculations, the expectations on nuclear data are becoming more and more important. Not only must they provide an acceptable reproduction of experimental observables, but the evaluators must also handle their covariances in a rigorous way. In the case of Monte-Carlo codes for neutronics, the main source of uncertainty comes from nuclear data. This is why an accurate estimation of the nuclear data covariance matrix is mandatory in order to master the covariances on neutronic parameters. Our study fits into this context, and focuses on the particular case of the Prompt Fission Neutron Spectra (PFNS), for which no covariances are given in the latest JEFF evaluation. We will present an estimation of the covariance matrix, applicable to any fissioning system, and to three PFNS models. However, the results will only be shown for thermal-neutron induced fission of ^{235}U in

^ae-mail: leonie.berge@cea.fr

the frame of the Madland-Nix model [1]. These covariances will allow us in the near future to propagate the PFNS uncertainty on reactor calculation uncertainties. However, as a preliminary study we investigated the impact of the model, without any covariances involved, on reactor calculations. We will present a study of the neutron flux on a PWR vessel, depending on the ^{235}U thermal PFNS. This information is of major importance for the PWR reactor life-time prediction. In the sodium-cooled fast reactor domain, we also studied the influence of the PFNS on the penetration of fission neutrons through sodium. This study has been lead by the JANUS - Phase 8 experiment [2].

2 PFNS models considered in the present study

The PFNS is defined as the probability density function $\chi(E)$ for the prompt fission neutron kinetic energy, such that the neutron has a probability $\chi(E)dE$ to be emitted with an energy lying between E and $E+dE$; it is therefore normalized to one. The simplest and most widely used model consists in approximating the PFNS with a Maxwellian function. It takes only one parameter, the “temperature” T , which is energy-homogeneous, and has the well-known form $\chi^M(E, T) = 2/(\sqrt{\pi}T^3) \sqrt{E}e^{-E/T}$. This model, though the simplest, is still used for some isotopes in the latest JEFF evaluation. The Watt spectrum [3] has two parameters, T_W and E_f . It corresponds to the transformation of a Maxwellian center-of-mass spectrum into the laboratory frame, considering an average fragment moving with an average kinetic energy per nucleon E_f . The Madland-Nix model [1] is built from the Weisskopf theory of fission fragment evaporation. The spectrum of each fragment, light or heavy, is described by two parameters: the fragment maximal temperature T_m , assumed to be the same for light and heavy fragments (*i.e.* $T_m^L = T_m^H = T_m$), and the fragment kinetic energy per nucleon in the lab frame, $E_f^{L,H}$. The contributions of both fragments must be summed, and weighted by the ratio of the average fragment neutron multiplicity $\bar{\nu}_{L,H}$ over the total average prompt neutron multiplicity $\bar{\nu}_L + \bar{\nu}_H$. However, as the Madland-Nix spectrum is quite insensitive to this ratio, we set the contribution of the fragments to 50% each. We finally consider the PFNS computed by the FIFRELIN code [4, 5], which simulates the whole process of fission fragment de-excitation. The code, developed at CEA-Cadarache, allows calculating several prompt fission particle-related properties, in the frame of one consistent probabilistic model. This approach relies on a more refined model for energy repartition between the fragments and for the fragment de-excitation process. Two de-excitation modes are implemented: the Weisskopf model for neutrons (FIFRELIN-W) and a Hauser-Feshbach model for neutrons and gammas (FIFRELIN-HF).

To visualize the PFNS from different models, Figure 1 shows the difference between several PFNS and the ENDF/B-V evaluated PFNS for ^{235}U thermal fission. This last PFNS has been chosen as reference because it is widely used in nuclear industry for shielding calculations involving a fission source; it corresponds to a Watt spectrum ($T_W = 0.99$ MeV, $E_f = 0.55$ MeV). Among the spectra shown on Figure 1, we show a Maxwellian spectrum ($T = 1.32$ MeV); the Watt spectrum resulting from work presented in section 3 ($T_W = 1.01$, $E_f = 0.48$ MeV); the Watt spectrum from Cranberg ($T_W = 0.97$ MeV, $E_f = 0.53$ MeV) which is also commonly used for reactor calculations; the Madland-Nix spectrum resulting from work presented in paragraph 3 ($T_m = 1.01$ MeV, $E_f^L = 0.93$ MeV, $E_f^H = 0.29$ MeV). The JEFF-3.2 PFNS for $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ was also included, it is based on the Madland-Nix model, and is similar to the ENDF/B-VII.1 and JENDL-4.0 PFNS (as can be seen later on Figure 2a). Finally, we included the thermal ^{235}U PFNS computed by FIFRELIN-W. The average prompt fission neutron kinetic energy, computed with each of these models, is also shown in Figure 1.

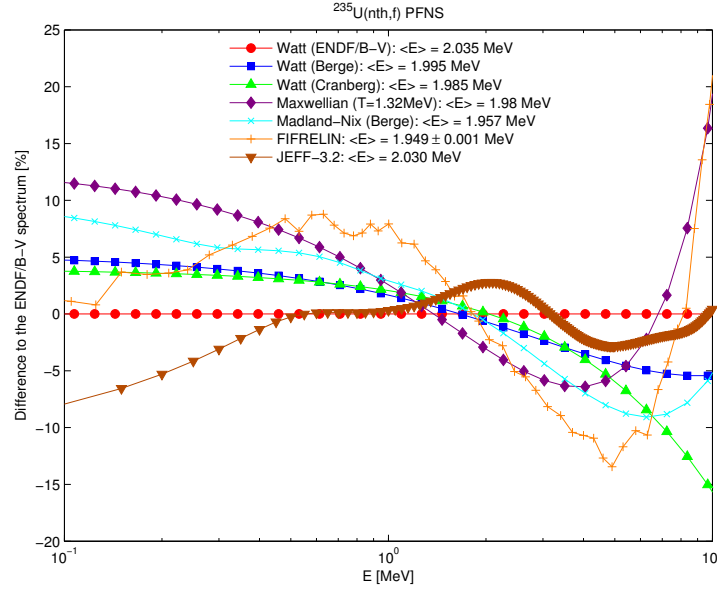


Figure 1: Relative difference between several PFNS and the ENDF/B-V PFNS. The legend indicates the average prompt fission neutron kinetic energy.

3 Generation of the PFNS variance-covariance matrix using CONRAD

CONRAD [6] is a code developed at CEA-Cadarache, devoted to nuclear data evaluation. In particular, it allows adjusting the free parameters of theoretical models to measured data through the Bayesian technique. The three models (Maxwellian, Watt and Madland-Nix) mentioned above were implemented and the model parameters were adjusted to the available experimental data with their random counting uncertainty. The FIFRELIN model of PFNS has no analytical form since it comes from a Monte-Carlo simulation, therefore it was not part of the present study. For Watt and Madland-Nix models, the *prior* parameter values were computed as suggested by Madland and Nix in reference [1]. The Maxwellian parameter T *prior* value was set as commonly suggested in the literature — namely, 1.32 MeV for ^{235}U thermal fission, 1.38 MeV for ^{239}Pu thermal fission, or 1.42 MeV for ^{252}Cf spontaneous fission. The *prior* uncertainty on the model parameters were put at 10% for T , T_w and T_m , and 7% for E_f , E_f^L and E_f^H , as suggested in reference [7]. No *prior* correlation was considered between the model parameters. After the adjustment, we obtain the best-fit values $\vec{x}_{\text{adj.}}$ for the model parameters, and their covariance matrix $M_x^{\text{adj.}}$. However, there is a second set of parameters that influence the adjustment, called the "nuisance" parameters $\vec{\theta}$. They are related to experimental spectra used in the adjustment; a few examples are normalization, background, or detection efficiency. Their covariances need to be propagated to our calculated spectrum, although we want the calculated spectrum to depend only on model parameters \vec{x} . After the adjustment, we use the marginalization technique [8] available in CONRAD to make the covariances of model parameters bear the covariances of nuisance parameters. If G is the matrix containing the derivatives of the PFNS to all parameters (model parameters and nuisance parameters), and M is the covariance matrix of all these parameters, then the PFNS covariance matrix is $M_{\text{PFNS}} = G M G^T$. The idea of the marginalization is to find a covariance matrix $M_x^{\text{marg.}}$ for model parameters which allows to reproduce the same covariance matrix M_{PFNS} , i.e. we want $M_x^{\text{marg.}}$ such that $G M G^T = G_x M_x^{\text{marg.}} G_x^T$. This gives us [9]:

$$M_x^{\text{marg.}} = M_x^{\text{adj.}} + \left(G_x^T \cdot G_x \right)^{-1} \cdot G_x^T \cdot G_{\theta} \cdot M_{\theta} \cdot G_{\theta}^T \cdot G_x \cdot \left(G_x^T \cdot G_x \right)^{-1}$$

M_θ is the covariance matrix of the marginalized parameters (normalization, background, etc.), and G_θ is the matrix containing the derivatives of the spectrum to the marginalized parameters. When using the marginalization, the experimental covariance matrix used in the adjustment — before marginalization — must not account for the covariances of marginalized parameters, in order not to double-count them. It is important to note that after marginalization, the final PFNS has no dependence to the nuisance parameters, and only depends on the model parameters. The PFNS remains a pure Maxwellian, Watt or Madland-Nix PFNS; only the covariance matrix of the model parameters is influenced by the marginalization. Even though the marginalization could be used for representing model defects, in this application it is used to account for experimental systematic uncertainties.

We will present here the results for thermal neutron-induced fission of ^{235}U . The experimental spectra that we used to calculate the covariance matrix of ^{235}U thermal fission were those from Nefedov *et al.*, 1983 (EXFOR entries 40871007 and 40871008), Starostov *et al.*, 1981 (ref. [10]), Starostov *et al.*, 1983 (EXFOR entry 40872004), Lajtai *et al.*, 1985 (EXFOR entry 30704003) and Hamsch *et al.*, 2010 [11]. We marginalized the experimental normalization of the measurements. The calculated PFNS has a norm constrained to one by construction; marginalizing on the experimental normalization may not seem consistent. However, experimental spectra used for the adjustment are constructed most of the time with several experiments not covering the whole energy range and as a result with potential normalization issues. For this reason, marginalizing the normalization, by adding an additional degree of freedom, could be seen as a first attempt to allow the experimental spectra to be consistent one with another. The uncertainty on the normalization of each experimental spectrum was estimated, based on the statistics collected in the experiment of interest; no correlation was considered between the different experiments, i.e. M_θ is diagonal. The resulting PFNS value relative to a Maxwellian ($T = 1.32$ MeV), standard deviation ($\sigma_i = \sqrt{\text{cov}(i, i)}$) and correlation matrix ($\text{corr}(i, j) = \text{cov}(i, j)/(\sigma_i \cdot \sigma_j)$) are shown in Figure 2. The experimental uncertainties represented are the ones given by the experimentalists. To save space, we will only present the results using the Madland-Nix model, for thermal fission of ^{235}U . The PFNS standard deviation as a function of the neutron energy is of the order of the experimental uncertainties. The PFNS shows high correlation for energies on the same side of about 2 MeV, and high anti-correlation for energies on different sides of this energy. This is the kind of pattern one can expect for a unity-normalized quantity. We can also see the PFNS taken from the three evaluations JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 and JENDL-4.0 (Figure 2a), as well as uncertainties (Figure 2b) and correlations (Figure 2c) in the case of ENDF/B-VII.1 and JENDL-4.0. The three libraries give a PFNS based on the Madland-Nix model. The PFNS from this work is closer to the measurements at low energy (below 1 MeV). However, we can see from Figure 2b that the Madland-Nix model does not allow for the uncertainty to follow the shape of the experimental uncertainty, especially below 1 MeV.

It is also possible to marginalize the energy-dependent neutron detection efficiency, if we have this information from the experimentalists. Since the marginalization technique works on experimental parameters, it is necessary to approximate the experimental efficiency with a function of some parameters; these parameters will be marginalized. Figure 3 shows the preliminary results for the thermal neutron-induced fission of ^{235}U calculated with the experimental data from Hamsch [11] (experimental PFNS and detection efficiency). The shape of the calculated PFNS uncertainty and correlation as a function of neutron energy is changed compared to Figure 2b, due to the energy dependence of the efficiency. To obtain a realistic result one must take into account as many measurements as possible. This preliminary result using only one PFNS shows the influence of the experimental parameters and their uncertainty.

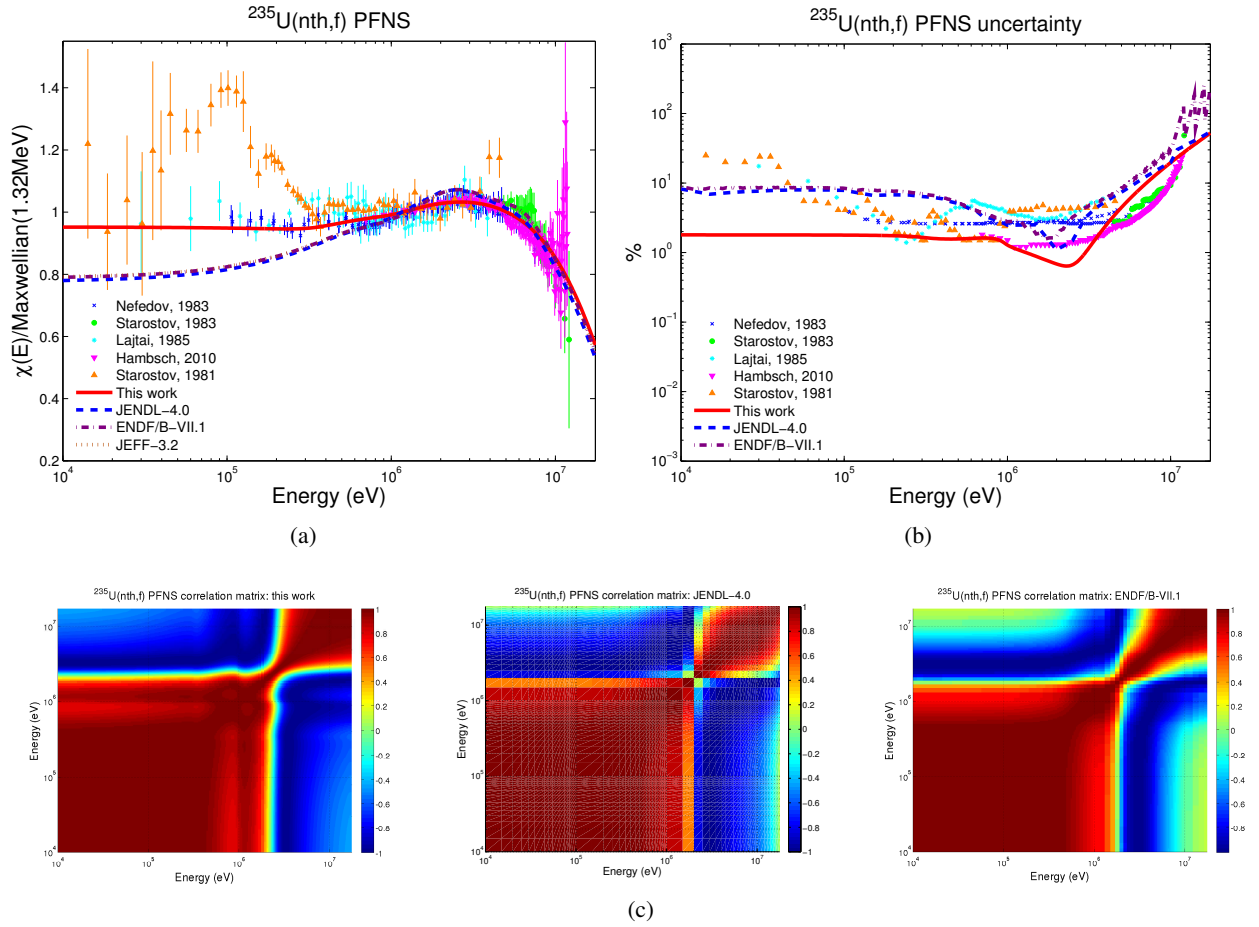


Figure 2: Results of the calculation for the Madland-Nix PFNS of ^{235}U (thermal neutron induced fission), marginalizing the experimental normalization (see text for full details). The PFNS obtained is compared to various libraries (a). The uncertainties (b) and correlations (c) resulting from this work are compared to those from JENDL-4.0 and ENDF/B-VII.1.

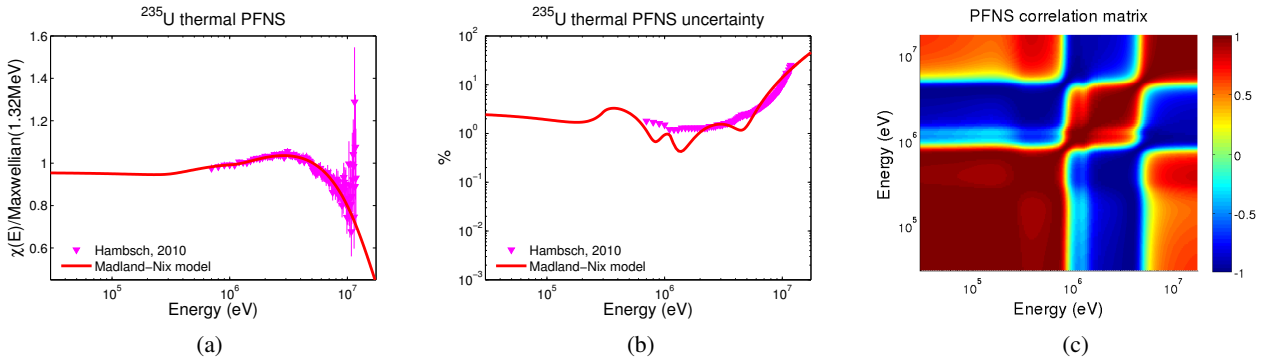


Figure 3: Madland-Nix PFNS of ^{235}U (thermal neutron induced fission), marginalizing the experimental detection efficiency, calculated with the data from Hambsch [11] (see text for full details).

4 Preliminary study of the sensitivity to the PFNS of a PWR vessel fluence

Producing more accurate nuclear data models and more complete covariance matrices is not useful if the neutronic observables we are interested in are not sensitive to them. Before propagating the PFNS covariances to reactor calculation uncertainties, we investigated the sensitivity of important neutronic parameters, like the vessel fluence, to the PFNS shape. The Monte-Carlo code TRIPOLI-4®[12] was used to compute the vessel flux, on the vessel inner side on a simplified PWR benchmark, with nuclear data mainly from JEFF-3.1.1. The geometry is a simplified quarter core, surrounded by water, the hot and cold water separated by a stainless steel envelope. The steel vessel envelopes the whole, and is separated from the concrete layer by vacuum. The neutrons propagate from the core to the vessel. The calculation was performed several times, each time using a different energetic distribution of the neutron source, corresponding to different PFNS for thermal-induced ^{235}U fission. The PFNS that were tested on this benchmark are the ones presented in paragraph 2, and shown in Figure 1. Figure 4 shows the resulting vessel flux, as well as the difference between the flux obtained for each PFNS and the flux obtained with the ENDF/B-V PFNS. We observe that the flux variation in each energy group, due to the change of the energetic distribution of the neutron source, is of the order of a few percent. The biggest discrepancies appear above 8 MeV and are very large above 10 MeV; however, the vessel flux at these energies is very small. For all the spectra tested, the vessel flux below 6 MeV is lower than in the case of the ENDF/B-V PFNS.

It would be interesting to also compute the sensitivity of the calculated displacement per atom (dpa) to the changes in PFNS. The difference in the flux is more important for high neutron energies; high energy neutrons are less frequent, but they cause more damage to the vessel. It is planned to compute the dpa associated to the different PFNS as well.

5 Preliminary study of the prompt fission neutrons propagation through sodium depending on the PFNS

The JANUS - Phase 8 experiment [2], performed in the NESTOR core in Winfrith, UK, was designed to measure the penetration of neutrons in sodium, as a support for the sodium-cooled fast neutron reactor development. The fission source was a ^{235}U -enriched plate placed in the thermal neutron beam from NESTOR. The fission neutrons propagated through sodium tanks. Neutron detectors such as $^{103}\text{Rh}(n, n')^{103\text{m}}\text{Rh}$ or $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ detectors, were placed at different distances from the fission source. The experiment has been modelled with TRIPOLI-4®[2]. The reaction rates in the detectors were computed for different energetic distributions of the fission source, corresponding to the same PFNS that were studied in paragraph 4. We compared the calculated reaction rates to the measured reaction rates, as a function of the distance to the source. The results for the ^{32}S detectors is shown in Figure 5. The C/E values show the same tendency for every PFNS as a function of the distance; however we see some influence of the PFNS. The ENDF/B-V PFNS leads to the highest reaction rates, especially for small distances — this PFNS has the highest mean neutron energy and highest component in the 2-6 MeV range. For low distances on the other hand, the Maxwellian and the FIFRELIN-W PFNS lead to the lowest reaction rates. For larger distances, the sulfur detector being sensitive to fast neutrons, the situation is reversed (high component above 7 MeV for these two PFNS, see Figure 1).

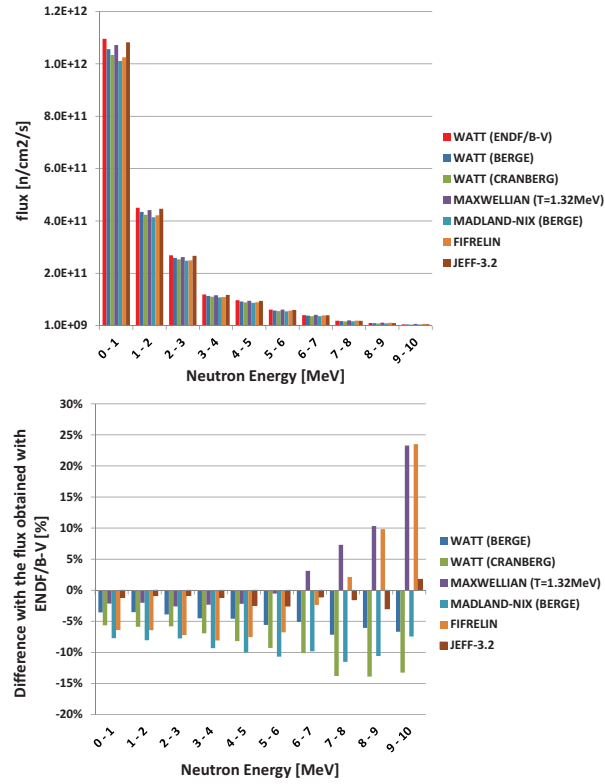


Figure 4: Neutron flux on the vessel, computed by TRIPOLI-4[®]. The graph on top shows the absolute flux for each PFNS, while the bottom graph shows the relative difference between the flux obtained with each PFNS and the flux obtained with the ENDF/B-V PFNS. The bars are in the same order than the legend, *i.e.* for each energy group, the left bar corresponds to the Watt spectrum from this work, the bar on its right corresponds to the Watt spectrum from ENDF/B-V, etc.

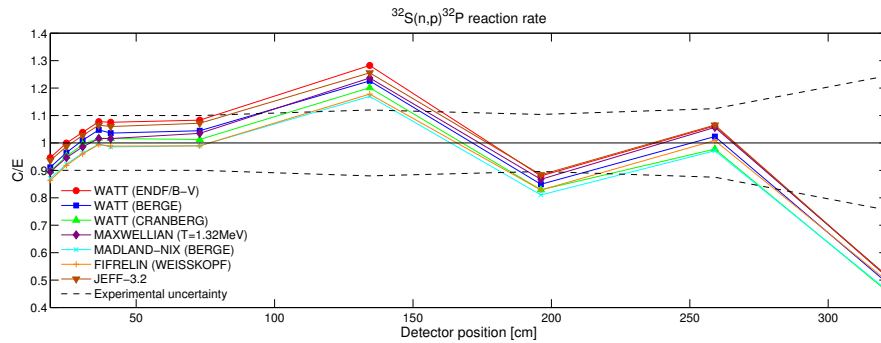


Figure 5: Calculated value over measured value (C/E) for the (n, p) reaction rate in the sulfur detector in the JANUS-8 experiment.

6 Conclusion and perspectives

The CONRAD code allows in a single calculation the adjustment of nuclear data model parameters, and the generation of the covariance matrix in the frame of this model. We presented the PFNS covariance matrix obtained for thermal fission of ^{235}U . The systematic uncertainty is propagated via the marginalization technique. The uncertainty of the final spectrum is of the same order than the uncertainties on the PFNS measurements used for the study, although the shape of the uncertainty as a function of neutron energy strongly depends on the PFNS model under study. The systematic uncertainty included in our calculation comes from the experimental uncertainty on normalization; we also show the influence of the neutron detection efficiency uncertainty. It is intended in the future to generate the covariance matrix associated to the PFNS from the FIFRELIN probabilistic code. To improve the PFNS accuracy and predictive power, CONRAD will be used to optimize the model parameters involved in the Weisskopf model in FIFRELIN, in order to account for the energy-dependence of the inverse cross-section in particular.

As an illustration for the need to generate the PFNS covariances, we showed a Monte-Carlo calculation of the neutron flux received by a PWR vessel, depending on the PFNS used for thermal fission of ^{235}U . A study of the contribution of source neutrons, depending on their energy at their creation, on the vessel neutron flux, is underway. The sensitivity of the vessel flux to a change of PFNS, or to a change of PFNS model parameters, would then be deduced directly, without having to run any additional simulations. This has been calculated since the writing of the present paper. We also showed the impact of the PFNS on fission neutron penetration through sodium, using the JANUS - Phase 8 experiment. The discrepancy between calculated and measured reaction rates in the detector shows the same rough trends as a function of penetration for every PFNS. No clear improvement of the C/E values arises from the study, although the sensitivity to the PFNS is non negligible. Again, it is planned to use in the near future the Green functions in TRIPOLI-4® to compute the contribution of the neutron birth energy to the reaction rate in the detector. It will be possible to give the change in PWR vessel flux, and in neutron penetration through sodium, associated to the PFNS recently available from IAEA [13].

Acknowledgements

We wish to thank F.-J. Hambsch and N. Kornilov for providing us experimental data on $^{235}\text{U}(n_{\text{th}},f)$.

References

- [1] D.G. Madland, J.R. Nix, Nucl. Sci. Eng. **81**, 213 (1982)
- [2] P. Archier et al., JEF/DOC-1247 (2008); A. Avery, report NEA 1517/42 (1998)
- [3] B. Watt, Phys. Rev. **87**, 1037 (1952)
- [4] O. Litaize, O. Serot, Phys. Rev. C **82**, 054616 (2010)
- [5] D. Regnier, O. Litaize, O. Serot, Physics Procedia **47**, 47 (2013)
- [6] P. Archier et al., Proc. of the Int. Conf. on Nucl. Data for Sc. and Tech. - ND2013 (2013)
- [7] P.J. Griffin, J.G. Williams, Tech. Rep. SAND98-3662C (2000)
- [8] B. Habert, C. De Saint Jean, G. Noguère, Nucl. Sci. Eng. **166**, 276 (2010)
- [9] P. Archier, Ph.D. thesis, Université de Grenoble (2011)
- [10] B. Starostov, A. Semenov, V. Nefedov, Rep. IAEA INDC(CCP)-164/L (1981)
- [11] F.-J. Hambsch, N. Kornilov, private communication (2014)
- [12] E. Brun et al., Tech. Rep. CEA-R-6316 (2013)
- [13] <https://www-nds.iaea.org/pfns/public.html>

Scientific Workshop on Nuclear Fission dynamics and the Emission of Prompt Neutrons and Gamma Rays, THEORY-3

Study on Prompt Fission Neutron Spectra and associated covariances for $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ and $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$

L. Berge^{a,*}, O. Litaize^a, O. Serot^a, C. De Saint Jean^a, P. Archier^a, Y. Penelieu^a

^aCEA, DEN, Cadarache, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France

Abstract

Prompt Fission Neutron Spectra (PFNS) are very important nuclear data for reactor neutronic calculation tools. Most of the international evaluated nuclear data libraries lie on the Madland-Nix model, which is based on evaporation theory of fission fragments. But very scarce data can be found regarding the PFNS covariance matrix associated to these evaluations. As an illustration of the impact of the PFNS on neutronic calculations, we will show a Monte-Carlo calculation of the neutron flux received by a PWR vessel, using different PFNS evaluations. The neutrons that have the highest probability to contribute to the vessel flux are those that are emitted at the highest energies; however most of the fission neutrons are emitted around 2 MeV. These results show the necessity to have very precise PFNS evaluations, and a proper estimation of associated covariances. The estimation of the PFNS covariance matrix associated to a model, after adjustment of model parameters, will be shown. This is performed by the CONRAD code, developed at CEA Cadarache. The final goal of the study is to adjust the parameters involved in fission fragments de-excitation in the FIFRELIN Monte-Carlo code, also developed at CEA Cadarache, which computes the PFNS among other fission quantities, and to provide the associated PFNS covariance matrix. However for the moment we focused the study on three historically widely used PFNS models: Maxwellian, Watt and Madland-Nix models. The covariance matrix on the adjusted spectrum comes mainly from the systematic uncertainty on some experimental parameters — namely the normalization, background, detection efficiency, etc. In order to propagate this type of uncertainties properly, the marginalization technique is used. A close knowledge of the conditions in which a particular experimental PFNS has been measured is required, in order to have a correct estimation of the PFNS uncertainties after adjustment. In this work, we propagated the uncertainty on normalization of experimental spectra, and the uncertainty on the energy-dependent neutron detection efficiency. We show the resulting PFNS and associated covariance matrix in the case of thermal neutron-induced fission of ^{235}U and ^{239}Pu .

© 2015 The Authors. Published by Elsevier B.V. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

Peer-review under responsibility of the European Commission, Joint Research Centre – Institute for Reference Materials and Measurements

Keywords: Prompt Fission Neutron Spectra, Thermal Fission, Covariance, Madland-Nix, FIFRELIN, CONRAD, vessel flux

* Corresponding author. Tel.: +33-4-42257250
E-mail address: leonie.berge@cea.fr

1. Introduction

The perspective of the future generation IV nuclear reactors leads to an increased interest about nuclear data evaluation, and especially evaluation of their covariances. Among these nuclear data, the prompt fission neutron spectra (PFNS) are of great influence in many applications. However, as new models and more precise evaluations are proposed, only scarce data exist about the associated covariances, *i.e.* no information about the goodness of most evaluated PFNS is given. Yet, the sensitivity of some neutronic calculations to the PFNS can be very important. As an illustration, after a brief reminder of some of the PFNS models, this paper shows the sensitivity of a PWR vessel flux to the PFNS. A good estimation of the flux received by the vessel is required for a good estimation of a reactor lifetime. In the second part of the paper, new calculations of PFNS will be shown, based on the adjustment of parameters inherent to three basic models. The covariance matrix associated to these spectra was estimated for thermal neutron induced fission of ^{235}U and ^{239}Pu .

2. The PFNS representations

Several models exist to represent the PFNS. Some are only phenomenological and have no predictive power. It is the case for the Maxwellian model, for which only one model parameter, temperature T , is needed. The value of T depends on the fissioning system, and must be deduced from an adjustment on *a priori* knowledge of the PFNS. The Watt spectrum (Watt (1952)) considers a Maxwellian center-of-mass spectrum for both fission fragments, with a temperature parameter T_W ; the spectra are then boosted in the laboratory frame, considering the average kinetic energy per nucleon E_f of the fragments. For these two models, no predictions can be made on the model parameters in the absence of experimental data. The Madland-Nix or Los Alamos model, used in the current international evaluated libraries, considers an evaporation spectrum in the center-of-mass frame (COM) for both fragments (Madland and Nix (1982)), convoluted by a probability distribution for the temperature, the maximal value being T_m . It considers different average kinetic energies per nucleon, E_f^L and E_f^H for light and heavy fragments respectively. We focused our PFNS covariance study on these three simple models, as will be mentioned in section 4. To investigate the influence of the PFNS on a vessel flux calculation (section 3), we also considered the PFNS calculated by the FIFRELIN code (Litaize and Serot (2010)), developed at CEA Cadarache. FIFRELIN is a probabilistic code which simulates the fission fragment de-excitation and the emission of the prompt particles. It calculates the PFNS among other fission-related quantities. There are two models implemented in FIFRELIN for the simulation of prompt neutron emission: one is based on the Weisskopf theory (Weisskopf (1937)), the second is based on a Hauser-Feshbach algorithm for emission of neutrons and gammas in competition (Regnier et al. (2013)).

3. Sensitivity of a vessel flux calculation to PFNS

The sensitivity of a PWR vessel flux to the PFNS of ^{235}U was investigated using the Monte-Carlo transport code TRIPOLI-4[®] (Brun et al. (2013)). The geometry is that of a simplified PWR quarter-core, and the nuclear data used are those from JEFF-3.1.1. Neutrons are emitted by a neutron source and propagate. The neutron flux received by the inner side of the vessel was calculated with different PFNS of $^{235}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ for the source spectrum. To avoid running the simulation for every different spectrum, the Green functions functionality of TRIPOLI-4[®] was used. It allows calculating the neutron importance function $p_{gg'}$, *i.e.* the probability that a neutron which is emitted with an energy in group g reaches a given surface element S on the vessel with an energy in group g' . $p_{gg'}$ is independent of the source spectrum. For any source spectrum χ_g , the contribution $\Phi_{gg'}$ of neutrons emitted in group g to the vessel flux in group g' , is the probability $p_{gg'}$ times the number of neutrons that were emitted in group g . We write $\Phi_{gg'} = p_{gg'} \cdot (N/S) \cdot \chi_g \cdot \Delta E_g$, where N is the total number of neutrons emitted by the source per second (about 10^{20} n/s), χ_g is the source spectrum in group g and ΔE_g is the width of group g . $\Phi_{gg'}$ is in $\text{n}/(\text{s}\cdot\text{cm}^2)$. The vessel flux in group g' is simply $\Phi_{g'} = \sum_g \Phi_{gg'}$. There are two big advantages of using the Green functions calculation. The first one is that $\Phi_{g'}$ can be deduced from any source spectrum, without additional simulation. The different source spectra χ_g investigated are shown in Figure 1a in absolute, and in Figure 1b relatively to JEFF-3.2. The associated vessel flux $\Phi_{g'}$ is shown in Figure 1c in absolute, and in Figure 1d relatively to the one obtained with the JEFF-3.2 spectrum. All the spectra tested are softer than the JEFF-3.2 spectrum. All of them emit more neutrons below 1 MeV. However,

these neutrons have a very low probability to reach the vessel, therefore the flux on the vessel below 1 MeV is almost only due to higher source energy groups.

The second advantage of the Green functions is that $p_{gg'}$ gives valuable information about what spectrum domain will be more influent on the vessel flux. Figure 2 shows the importance function $p_{gg'}$. The neutrons having the highest probability to reach the vessel are those emitted roughly above 15 MeV. However, Figure 1a shows that only around $10^{-4}\%$ of the neutrons are emitted at these energies. Therefore, the neutrons emitted above 15 MeV do not contribute much to the vessel flux. It can be seen more directly on Figure 3 which represents the contribution of each source energy to the total vessel flux above 1 MeV. The flux above 1 MeV is interesting in terms of damage on the vessel. About 80% of the vessel flux above 1 MeV comes from the neutrons emitted between 2 and 7 MeV.

These results show that an error of a few percent on the PFNS will result on an error of the same order on the vessel flux; in other words, for this application it is mandatory to handle the covariances associated to a PFNS evaluation, whereas this information is sometimes missing (there are no PFNS covariances in JEFF-3.2). The next section will show an estimation of the covariance matrix associated to new PFNS adjustment in the frame of three models.

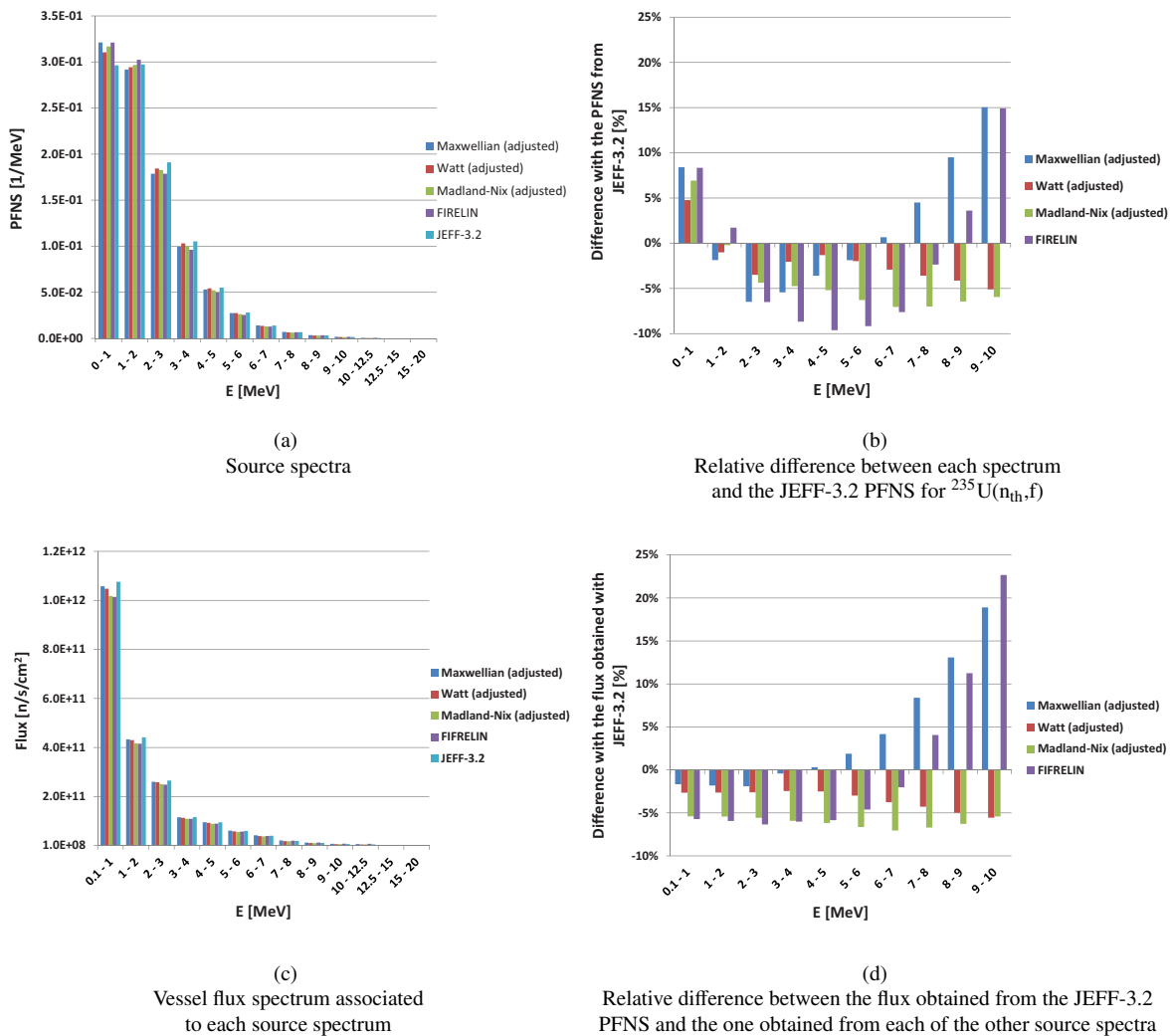


Fig. 1: PFNS and associated vessel flux

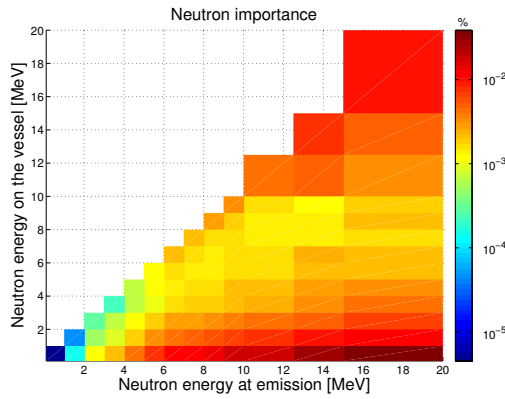


Fig. 2: Neutron importance $p_{gg'}$

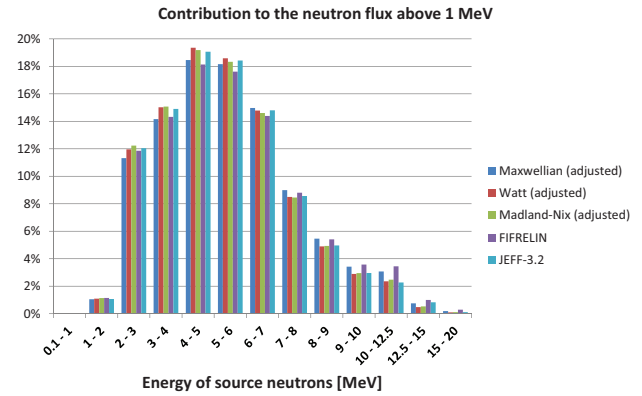


Fig. 3: Contribution of each source energy group to the vessel flux above 1 MeV

4. Calculation of the PFNS and its covariance matrix

The goal of this study is to provide a methodology to estimate the covariance matrix associated to the PFNS resulting from an adjustment, in the frame of a particular model. We applied this calculation to the Maxwellian, Watt and Madland-Nix (with constant inverse cross-section) models.

The first step of the calculation is a Bayesian adjustment of the model parameters on experimental data. This is performed by the CONRAD code, developed at CEA Cadarache (Archier et al. (2014)). We call \mathbf{x} the set of model parameters to be adjusted; at the end of the adjustment, we get the “best-fit” parameters \mathbf{x} and their covariance matrix $\mathbf{M}_{\mathbf{x}}^{\text{stat}}$. $\mathbf{M}_{\mathbf{x}}^{\text{stat}}$ accounts for the uncertainty on the *prior* values of \mathbf{x} , and for the “statistical” part of the experimental uncertainty, that is the random counting uncertainty. No correlations between the data points are propagated at this step. The “systematic” part of the experimental uncertainty, coming from experimental parameters such as normalization, background, or detection efficiency, must be propagated after the adjustment. We apply the marginalization technique (Habert et al. (2010)), implemented in CONRAD, for the systematic uncertainty. The principle of marginalization is to include the covariance of the marginalized parameters (normalization, background, etc.) in the final covariance matrix $\mathbf{M}_{\mathbf{x}}^{\text{marg}}$ of the adjusted parameters \mathbf{x} . After marginalization, the covariance matrix of the model parameters contains the uncertainty on the marginalized parameters, and the covariance matrix of the adjusted PFNS is simply $\mathbf{M}_{\text{PFNS}} = \mathbf{G}_{\mathbf{x}} \cdot \mathbf{M}_{\mathbf{x}}^{\text{marg}} \cdot \mathbf{G}_{\mathbf{x}}^T$, where $\mathbf{G}_{\mathbf{x}}^{i,j} = \partial \chi_i / \partial x_j$.

In our calculation, two types of parameters are marginalized at the time being: the experimental normalization, and the energy-dependent detection efficiency $\epsilon(E)$. The normalization uncertainty is due to the limited energy domain covered by the measurement. The ignorance of the actual normalization leads to an uncertainty on the shape of the final PFNS. This uncertainty has to be propagated in the final PFNS covariance matrix. The uncertainty on the energy-dependent detection efficiency is another source of uncertainty on the spectrum shape. However, this information is rarely available. We considered the data from Hambach and Kornilov (2014) for the detection efficiency of a NE-213 neutron detector. As explained in Berge et al. (2014), the efficiency as a function of the neutron energy was approximated by a fitting function, so as to marginalize the parameters of this function. As a first step and in the absence of experimental data for efficiency, the same uncertainty on $\epsilon(E)$ was considered for the other spectra measured using an organic scintillator. The results in the frame of the Madland-Nix model, for $^{235}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ and $^{239}\text{Pu}(n_{\text{th}},f)$ are presented in Figures 4 and 5. The PFNS obtained and its uncertainty (Figures 4a, 4b, 5a and 5b) are compared to what is present in the three international evaluations JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 and JENDL-4.0 (only the two latter give covariances information for PFNS). There are differences in the shape of the spectrum between the spectrum resulting from the present study and the three evaluated spectra. The sets of experimental data used in the adjustment were different, but there are also differences in the model implementation.

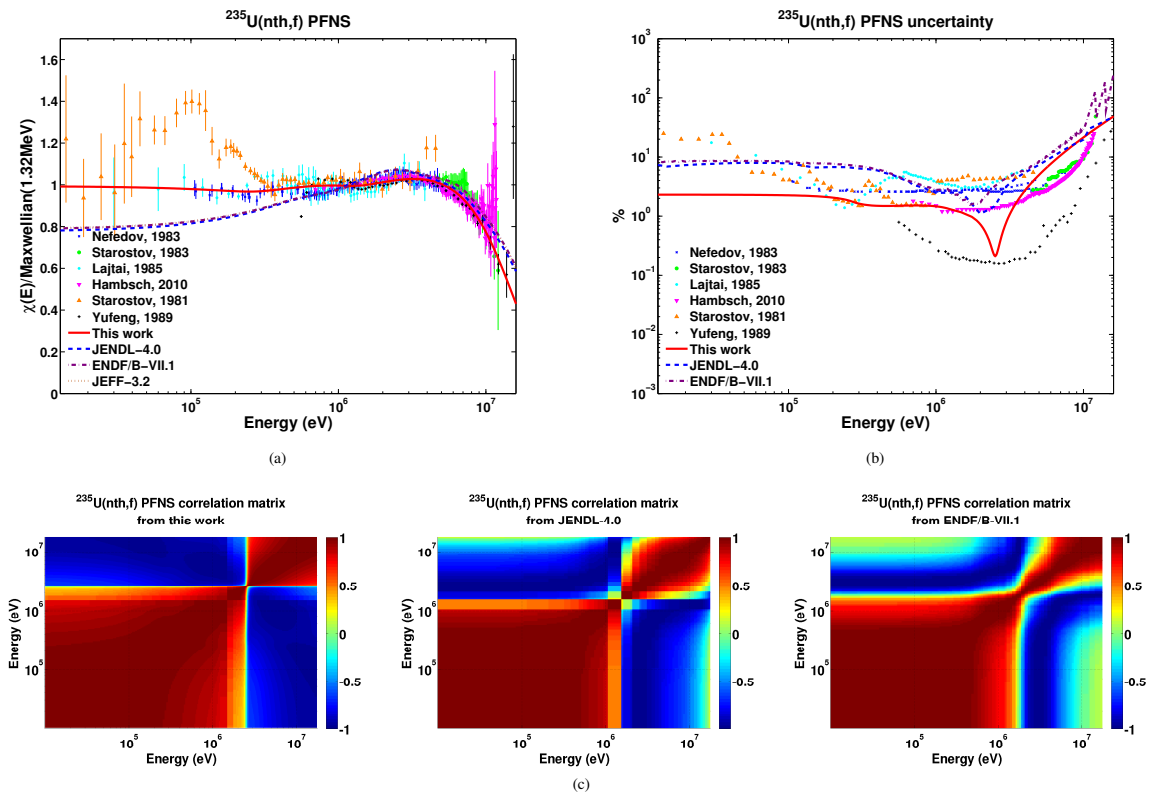


Fig. 4: Results of the calculation for the Madland-Nix PFNS of $^{235}\text{U}(\text{nth},\text{f})$ (see section 4 for details). The PFNS obtained (a) and its uncertainty (b) are compared to other evaluations. The correlation matrix is compared to the ones coming from other evaluations (c).

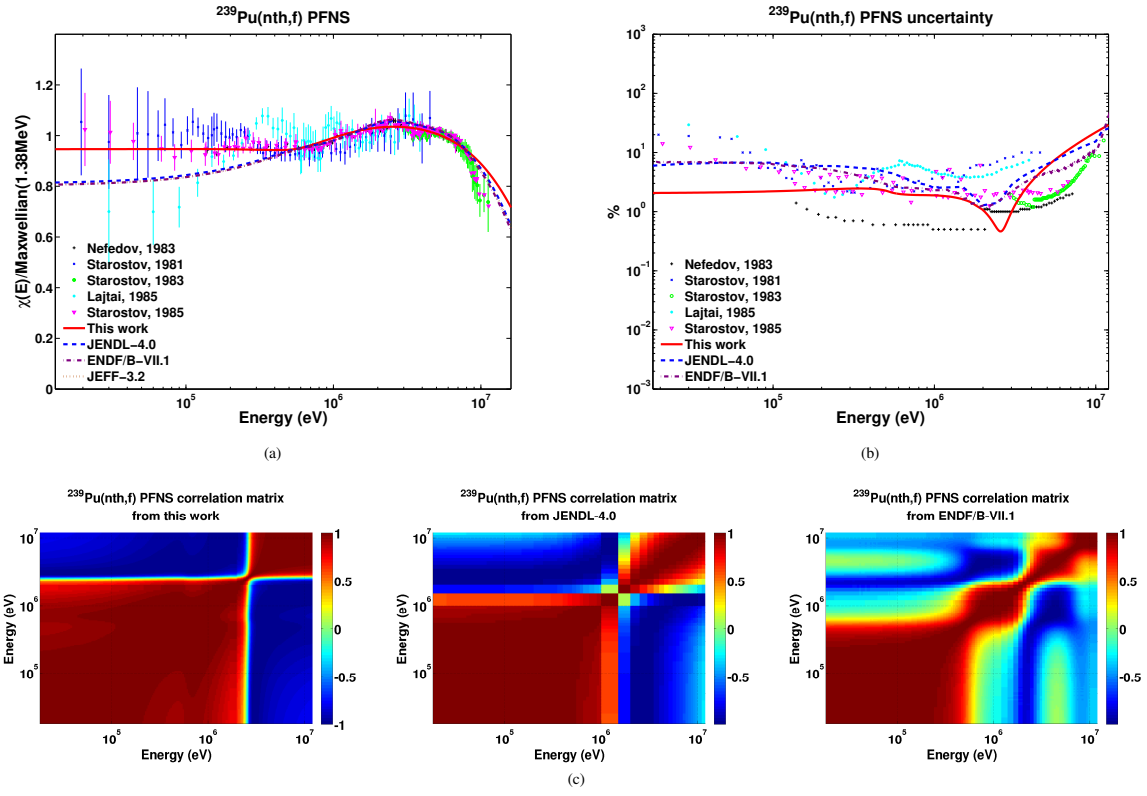


Fig. 5: Results of the calculation for the Madland-Nix PFNS of $^{239}\text{Pu}(\text{nth},f)$ (see section 4 for details). The PFNS obtained (a) and its uncertainty (b) are compared to other evaluations. The correlation matrix is compared to the ones coming from other evaluations (c).

The Madland-Nix model used in the evaluated libraries is more sophisticated than the present implementation in CONRAD, especially in CONRAD no energy dependence of the inverse cross-section is considered, although it is planned to include this dependence in the near future. The PFNS correlation matrix obtained is compared to the ENDF/B-VII.1 and JENDL-4.0 evaluations (Figures 4c and 5c). The final correlation matrix shows a “binary” pattern: strong correlation on the same side of a “pivot” energy, and strong anti-correlation on either side of this energy. The inclusion of the detection efficiency uncertainty in the PFNS covariance matrix attenuates the structures in the correlation matrix that were observed in previous studies (Berge et al. (2014)). This methodology was only applied to analytical PFNS models so far. The next step is to apply this methodology to adjust the parameters in the FIFRELIN Monte-Carlo code and to produce the associated covariance matrix.

5. Conclusion and perspectives

The present paper showed in a first part the sensitivity of a PWR vessel flux calculation to the Prompt Fission Neutron Spectra. It was shown that fast neutrons (above 15 MeV) are the most important for the flux on the vessel; however, these neutrons being rarely emitted, the vessel flux is most sensitive to the neutrons emitted between around 2 and 6 MeV. This study showed the non-negligible discrepancies in the flux obtained from different source spectra, and thus, the necessity to handle the PFNS covariances, in order to give an uncertainty associated to a vessel flux calculation. In a second part, a new calculation of PFNS and their covariance matrices was given, based on an adjustment to experimental data, in the frame of three common models: Watt, Maxwellian and Madland-Nix models. The final covariance matrix accounts for the uncertainty on the *a priori* knowledge of model parameters, and on experimental uncertainty. It is most sensitive to the systematic uncertainties coming from experiment. The latter are propagated after the adjustment, through the marginalization technique. Uncertainties on normalization and on energy-dependent detection efficiency are marginalized. The results for $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ and $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ were given and compared to what exists in the three evaluated libraries JEFF-3.2, ENDF/B-VII.1 and JENDL-4.0. The uncertainties obtained in this paper are still somewhat lower than the ones found in the evaluations. The shape of the PFNS is also different, due to differences in the model used, and to the differences in the experimental set considered in each case. It is planned to use this type of calculations to obtain a covariance matrix associated to the PFNS from FIFRELIN. FIRELIN gives a more physical representation of the PFNS, since it considers the whole fission fragment de-excitation process in one calculation, and it gives a physical frame to compute fission observables in a correlated way.

Acknowledgements

The authors would like to thank F.-J. Hambsch and N. Kornilov for providing their data on $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$.

References

- Archier, P., et al., 2014. CONRAD evaluation code: Development status and perspectives. Nuclear Data Sheets 118, 488–490.
- Berge, L., Litaize, O., Serot, O., Archier, P., De Saint Jean, C., Penelieu, Y., Regnier, D., 2014. Estimation of covariances on prompt fission neutron spectra and impact of the PFNS model on the vessel fluence. Accepted in EPJ Web of Conferences.
- Brun, E., et al., 2013. TRIPOLI-4 version 8 User Guide. Technical Report CEA-R-6316.
- Habert, B., De Saint Jean, C., Noguere, G., 2010. Retroactive generation of covariance matrix of nuclear model parameters using marginalization techniques. Nucl. Sci. Eng. 166, 276–287.
- Hambsch, F.-J., Kornilov, N., 2014. private communication.
- Litaize, O., Serot, O., 2010. Investigation of phenomenological models for the Monte Carlo simulation of the prompt fission neutron and γ emission. Phys. Rev. C 82, 054616.
- Madland, D.G., Nix, J.R., 1982. New calculation of prompt fission neutron spectra and average prompt neutron multiplicities. Nucl. Sci. Eng. 81, 213–271.
- Regnier, D., Litaize, O., Serot, O., 2013. Preliminary results of a full Hauser-Feshbach simulation of the prompt neutron and gamma emission from fission fragments. Physics Procedia 47, 47–52.
- Watt, B., 1952. Energy spectrum of neutrons from thermal fission of ^{235}U . Phys. Rev. 87, 1037–1041.
- Weisskopf, V., 1937. Statistics and nuclear reactions. Phys. Rev. 52, 295–303.

Bibliographie

- [1] P. Archier. *Contribution à l'amélioration des données nucléaires neutroniques du sodium pour le calcul des réacteurs de génération IV*. PhD thesis, Université de Grenoble, 2011.
- [2] P. Archier et al. CONRAD evaluation code : Development status and perspectives. *Nucl. Data Sheets*, 118 :488–490, 2014.
- [3] A. Avery. JANUS Phase 8 benchmark experiment - data for inclusion in the SINBAD database. Technical Report NEA 1517/42, NEA, 1998.
- [4] F. D. Becchetti et G. W. Greenlees. Nucleon-nucleus optical-model parameters, $A > 40$, $E < 50$ MeV. *Phys. Rev.*, 182 :1190–1209, Juin 1969.
- [5] L. Berge, et al. Estimation of covariances on prompt fission neutron spectra and impact of the PFNS model on the vessel fluence. Accepted in EPJ Web of Conferences, Septembre 2014. Proceedings of 15th International Symposium on Reactor Dosimetry.
- [6] O. Bersillon. SCAT2 : Un programme de modèle optique sphérique. Technical Report CEA-N-2227, Commissariat à l'Energie Atomique, Octobre 1981.
- [7] F. Bečvář. Simulation of γ cascades in complex nuclei with emphasis on assessment of uncertainties of cascade-related quantities. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 417 :434, 1998.
- [8] N. Bohr. Neutron capture and nuclear constitution. *Nature*, 137 :344–348, 1936.
- [9] S. Bourganel, O. Petit, et C. M. Diop. Three-dimensional particle transport using green's functions in tripoli-4 monte carlo code : Application to pwr neutron fluence and ex-core response studies. *Nucl. Tech.*, 184 :29–41, 2013.
- [10] E. Brun et al. TRIPOLI-4 version 8 user guide. Technical Report CEA-R-6316, Commissariat à l'Energie Atomique, Février 2013.
- [11] C. Budtz-Jørgensen et H.-H. Knitter. Simultaneous investigation of fission fragments and neutrons in ^{252}Cf (SF). *Nucl. Phys. A*, 490 :307–328, 1988.
- [12] R. Capote et al. RIPL — Reference Input Parameter Library for calculation of nuclear reactions and nuclear data evaluations. *Nucl. Data Sheets*, 110 :3107–3214, Décembre 2009.
- [13] N. Carjan, P. Talou, et O. Serot. Emission of scission neutrons in the sudden approximation. *Nucl. Phys. A*, 792 :102–121, 2007.
- [14] M. Chadwick et al. ENDF/B-VII.1 nuclear data for science and technology : Cross sections, covariances, fission product yields and decay data. *Nucl. Data Sheets*, 112 :2887–2996, 2011.
- [15] A. Châtillon et al. Measurement of prompt fission neutron spectra from the $^{239}\text{Pu}(\text{n},\text{f})$ fission reaction for incident neutron energies from 1 to 200 MeV. *Phys. Rev. C*, 89, Janvier 2014.

- [16] C. De Saint Jean, et al. A Monte Carlo approach to nuclear model parameter uncertainties propagation. *Nucl. Sci. Eng.*, 161 :363–370, 2009.
- [17] S. E. Derenzo. Scintillation counters, photodetectors and radiation spectroscopy. Dans *IEEE short course Radiation Detection and Measurement*, 1997.
- [18] J. Dickens. SCINFUL — A Monte Carlo based computer program to determine a scintillator full energy response to neutron detection for en between 0.1 and 80 MeV : Program development and comparisons of program predictions with experimental data. Technical report, Oak Ridge National Laboratory, Avril 1988.
- [19] G. Dietze et H. Klein. NRESP 4 and NEFF 4, Monte Carlo codes for the calculation of neutron response functions and detection efficiencies for NE213 scintillation detectors. Technical report, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig, Germany, 1982.
- [20] D. Durand et B. Tamain. La théorie statistique : perspectives et limites. Dans *Ecole Joliot Curie « Les noyaux en 1993 : une nouvelle façon d’exister »*, Septembre 1993.
- [21] S. Fernbach, R. Serber, et T. B. Taylor. The scattering of high energy neutrons by nuclei. *Phys. Rev.*, 75 :1352–1355, Mai 1949.
- [22] A. Gilbert et A. G. W. Cameron. A composite nuclear-level density formula with shell corrections. *Can. J. Phys.*, 43 :1446–1496, 1965.
- [23] P. J. Griffin et J. G. Williams. Adjustment of the ^{235}U fission spectrum. Technical Report SAND98-3662C, SANDIA, 2000.
- [24] B. Habert. *Estimation des Incertitudes dans l’Evaluation des Sections Efficaces de Réactions Nucléaires*. PhD thesis, Institut Polytechnique de Grenoble, 2009.
- [25] B. Habert, C. De Saint Jean, et G. Noguere. Retroactive generation of covariance matrix of nuclear model parameters using marginalization techniques. *Nucl. Sci. Eng.*, 166 :276–287, 2010.
- [26] R. Haight et al. Progress in the Measurement of Prompt Neutron Output in Neutron-Induced Fission of ^{239}Pu : The Chi-Nu Project. Technical Report LA-UR-12-25233, LANL, 2012.
- [27] F.-J. Hambsch, et al. Fission mode fluctuations in the resonances of $^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$. *Nucl. Phys. A*, 491 :56–90, 1989.
- [28] F.-J. Hambsch et N. Kornilov. Communication privée, 2014.
- [29] M. Herman et A. Trkov. ENDF-6 formats manual : Data formats and procedures for the evaluated nuclear data file ENDF-B-VI and ENDF/B-VII. Technical Report BNL-90365-2009, Brookhaven National Laboratory, Juin 2009.
- [30] P. E. Hodgson. The nuclear optical model. *Rep. Prog. Phys.*, 34 :765–819, 1971.
- [31] IAEA. CRP PFNS IAEA webpage. <https://www-nds.iaea.org/pfns/public.html>. Accessed : 2015-05-18.
- [32] A. V. Ignatyuk, G. N. Smirenkin, et A. S. Tishin. Phenomenological description of the energy dependence of the level density parameter. *Yad. Fiz.*, 21 :485–490, 1975.
- [33] M. Islam et H.-H. Knitter. The energy spectrum of prompt neutrons from the fission of Uranium-235 by 0.40-MeV neutrons. *Nuc. Sci. Eng.*, 50, 1972.
- [34] P. Johansson et B. Holmqvist. An experimental study of the prompt fission neutron spectrum induced by 0.5-MeV neutrons incident on uranium-235. *Nuc. Sci. Eng.*, 62, 1977.

- [35] M. Karlsson. Absolute efficiency calibration of a NE-213 liquid scintillator using a ^{252}Cf source. Master's thesis, Lund University Sweden, 1997.
- [36] I.-A. Kodeli. *Etudes des incertitudes sur la fluence dans les cuves des REP. Ajustement des données de base*. PhD thesis, Université Paris-Sud, 1993.
- [37] V. Kononov, et al. Neutron detection efficiency of a thick lithium glass detector. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A*, 234(2) :361–366, 1985.
- [38] N. Kornilov, F.-J. Hambsch, et al. The ^{235}U prompt fission neutron spectrum at 100 K input neutron energy. *Nucl. Sci. Eng.*, 165 :117–127, Mai 2010.
- [39] A. J. Köning et J. P. Delaroche. Local and global nucleon optical models from 1 keV to 200 MeV. *Nucl. Phys. A*, 713 :231–310, 2003.
- [40] N. M. Larson. Updated Users' Guide for SAMMY. Technical Report ORNL/TM-9179/R6, Oak Ridge National Laboratory, 2003.
- [41] Y. K. Lee. Analysis of the NRC PCA pressure vessel dosimetry benchmark using TRIPOLI-4.3 Monte-Carlo code and ENDF/B-VI, JEF-2.2 and IRDF-90 libraries. Dans *Proceedings of Nuclear Mathematical and Computational Science*, Gatlinburg, Tennessee (USA), Avril 2003.
- [42] Y. K. Lee. Analysis of the VENUS-3 PWR pressure vessel surveillance benchmark using TRIPOLI-4.3 Monte-Carlo code. Dans *Proceedings of the 12-th International Symposium on Reactor Dosimetry*, Gatlinburg, Tennessee (USA), Mai 2005.
- [43] Y. K. Lee. Investigation of ^{252}Cf fission spectra and SINBAD water shielding benchmarks using TRIPOLI-4.3 Monte-Carlo code. Dans *Proceedings of the American Nuclear Society's 14-th Biennial Topical Meeting of the Radiation Protection and Shielding Division*, Carlsbad, New-Mexico (USA), Avril 2006.
- [44] W. Leo. *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*. Springer-Verlag, 1987.
- [45] O. Litaize et O. Serot. Investigation of phenomenological models for the Monte Carlo simulation of the prompt fission neutron and γ emission. *Phys. Rev. C*, 82 :054616, Novembre 2010.
- [46] R. MacFarlane, et al. The NJOY nuclear data processing system, version 2012. Technical Report LA-UR-12-27079, Los Alamos National Laboratory, 2012.
- [47] D. G. Madland et J. R. Nix. New calculation of prompt fission neutron spectra and average prompt neutron multiplicities. *Nucl. Sci. Eng.*, 81 :213–271, 1982.
- [48] C. Manaiescu. *Theoretical description of prompt fission neutron multiplicity and spectra*. PhD thesis, Université de Bucarest, 2012.
- [49] W. Mannhart. Status of the ^{252}Cf fission neutron spectrum evaluation with regard to recent experiments. Dans *Physics of Neutron Emission in Fission, INDC(NDS)*, volume 220, pages 305–336. International Atomic Energy Agency, 1989.
- [50] A. Matsumoto, et al. Monte Carlo simulation of prompt neutron emission during acceleration in fission. *Journal of Nucl. Sci. and Tech.*, 49 :782–792, 2012.
- [51] B. Morillon et P. Romain. Bound single-particle states for neutrons from a global spherical optical model. *Phys. Rev. C*, 74 :014601, 2006.

- [52] M. C. Moxon, T. C. Ware, et C. J. Dean. REFIT-2009 A Least-Square Fitting Program for Resonance Analysis of Neutron Transmission, Capture, Fission and Scattering Data Users' Guide for REFIT-2009-10. Technical Report UKNSF(2010)P243, UK Nuclear Science Forum, 2010.
- [53] NEA. JEFF project website. <https://www.oecd-neo.org/dbdata/jeff>. Accessed : 2015-05-21.
- [54] V. Nefedov, B. Starostov, et A. Boytsov. High precision spectra measurements for neutrons arising from the fission of ^{252}Cf , ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu in the energy range 0.04 - 5 MeV. Dans *Neytronnaya Fizika, tom 2*, pages 285–289, 1984. En russe.
- [55] S. Noda et al. Prompt fission neutron spectra from fission induced by 1 to 8 MeV neutrons on ^{235}U and ^{239}Pu using the double time-of-flight technique. *Phys. Rev. C*, 83, Mars 2011.
- [56] T. Ohsawa. Representation of Fission Neutron Spectrum by non-equitemperature Madland-Nix model. Dans *Nuclear Data for Neutron Emission in the Fission Process*, pages 71–80. International Atomic Energy Agency, 1991.
- [57] T. Ohsawa, K. Tani, et Y. Kishimoto. Theoretical calculation of prompt neutron spectra from fission of curium isotopes. Dans *Proceedings of the 11-th International Symposium on Reactor Dosimetry*, pages 623–637, Bruxelles (Belgique), Août 2003.
- [58] N. Otuka et al. Towards a more complete and accurate experimental nuclear reaction data library (EXFOR) : International collaboration between nuclear reaction data centres (NRDC). *Nucl. Data Sheets*, 120(0) :272–276, 2014.
- [59] A. Prince, G. Reffo, et E. Sartori. Report on the international nuclear model code inter-comparison spherical optical and statistical model study. Technical Report NEANDC-152"A", INDC(NEA)4, NEA, Octobre 1983.
- [60] E. Privas. *Contribution à l'évaluation des incertitudes sur les sections efficaces neutroniques pour les réacteurs à neutrons rapides*. PhD thesis, Université de Grenoble, 2015. En préparation.
- [61] D. Regnier. *Contribution à l'étude des gammas prompts de fission*. PhD thesis, Université de Grenoble, 2013.
- [62] D. Regnier, O. Litaize, et O. Serot. Preliminary results of a full Hauser-Feshbach simulation of the prompt neutron and gamma emission from fission fragments. *Phys. Procedia*, 47 :47–52, 2013.
- [63] M. Rising, A. Prinja, et P. Talou. Prompt fission neutron spectrum uncertainty propagation using polynomial chaos expansion. *Nuc. Sci. Eng.*, 175 :188–203, 2013.
- [64] K. Shibata et al. JENDL-4.0 : A new library for nuclear science and engineering. *J. Nucl. Sci. Technol.*, 48 :1–30, 2011.
- [65] site Internet d'AREVA. Rubrique « qu'est-ce que le circuit primaire d'un réacteur ? ». <http://www.areva.com/FR/activites-4893/qu-estce-que-le-circuit-primaire-d-un-reacteur.html>. Accessed : 2015-05-21.
- [66] A. Smith, et al. Note on the prompt-fission-neutron-spectra of uranium-233 and -235 and plutonium-239 and -240 relative to that of californium-272. *Nucl. Sci. Eng.*, 76, 1980.

- [67] V. Sokolov et al. Investigations of the angular dependences of neutron-neutron coincidences from ^{252}Cf , ^{235}U , ^{233}U , and ^{239}Pu fission in search of scission neutrons. Dans *Proceedings of the 18th International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei*, Dubna, Russie, Mai 2010.
- [68] P. Staples et al. Prompt fission neutron energy spectra induced by fast neutrons. *Nucl. Phys. A*, 591 :41–60, 1995.
- [69] B. Starostov, V. Nefedov, et A. Boytsov. High precision spectra measurements for neutrons arising from the fission of ^{252}Cf , ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu in the energy range 0.04 - 5 MeV. Dans *Neutronnaya Fizika, tom 2*, pages 290–293, 1984. En russe.
- [70] B. Starostov, A. Semenov, et V. Nefedov. Measurement of prompt neutron spectra for ^{233}U , ^{235}U and ^{239}Pu thermal-neutron-induced fission in the 0.01-5 MeV energy region and for ^{252}Cf spontaneous fission in the 0.01-10 MeV region. Technical Report INDC(CCP)-164/L, IAEA, Juin 1981.
- [71] P. Tamagno. *Challenging fission cross-section simulation with long-standing macro-microscopic model of nucleus potential energy surface*. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2015.
- [72] J. Terrell. Distributions of fission neutron numbers. *Phys. Rev.*, 108 :783–789, 1957.
- [73] J. Terrell. Fission neutron spectra and nuclear temperatures. *Phys. Rev.*, 113 :527–541, 1959.
- [74] N. Thiollay et C. Destouches. Communication privée, 2015.
- [75] A. Tudora, et al. A refined model for $^{235}\text{U}(\text{n},\text{f})$ prompt fission neutron multiplicity and spectrum calculation with validation in integral benchmarks. *Nucl. Phys. A*, 756 :176–191, 2005.
- [76] N. Varapai. *Développement d’un dispositif expérimental basé sur la digitalisation des signaux et dédié à la caractérisation des fragments de fission et des neutrons prompts émis*. PhD thesis, Université de Bordeaux I, 2006.
- [77] I.-E. Visan et A. Tudora. Study of model parameters influence on prompt fission neutron spectrum. *Journal of Nuclear Research and Development*, 1 :43, 2011.
- [78] B. Watt. Energy spectrum of neutrons from thermal fission of ^{235}U . *Phys. Rev.*, 87 :1037–1041, Septembre 1952.
- [79] V. Weisskopf. Statistics and nuclear reactions. *Phys. Rev.*, 52 :295–303, Août 1937.
- [80] X-5 Monte Carlo team. MCNP — a general Monte Carlo N-particle transport code, version 5. Technical Report LA-UR-03-1987, Los Alamos National Laboratory, Avril 2003.

Résumé Le spectre des neutrons prompts de fission (PFNS) est une donnée très importante pour diverses applications de la physique nucléaire. Cependant, en dehors du spectre de la fission spontanée du ^{252}Cf , qui est reconnu comme un standard international et est utilisé pour la métrologie, le PFNS reste mal connu pour la plupart des noyaux fissionnants. En particulier, pour la fission rapide (induite par un neutron de plus de 100 keV environ), il existe peu de mesures, et les évaluations internationales présentent de fortes contradictions. De plus, il existe très peu de données sur les covariances associées aux diverses évaluations du spectre. Dans cette thèse, trois aspects de l'évaluation du PFNS sont abordés. Le premier aspect est la modélisation du spectre via le code FIFRELIN, développé au CEA Cadarache, qui simule la chaîne de désexcitation des fragments de fission par émissions successives de neutrons et gammas prompts par la méthode de Monte-Carlo. Ce code a pour vocation de calculer les observables de fission dans un même calcul cohérent, à partir des distributions en masse, en énergie cinétique et en spin des fragments de fission. FIFRELIN a donc un caractère prédictif que n'ont pas les modèles analytiques utilisés pour décrire le PFNS. Une étude des paramètres de modèle influents, notamment le paramètre de densité de niveaux, est menée afin de tenter de mieux reproduire le spectre. Le deuxième aspect de la thèse concerne l'évaluation du PFNS et de sa matrice de covariance. On propose une méthodologie pour évaluer le spectre et sa matrice de covariance de manière rigoureuse, à travers l'outil CONRAD du CEA Cadarache. Ceci implique la modélisation du spectre à travers des modèles simples, notamment celui de Madland-Nix qui est le plus utilisé dans les évaluations, en ajustant les paramètres de ces modèles afin de reproduire les données expérimentales. La matrice de covariance provient de la propagation rigoureuse des sources d'incertitude qui interviennent dans le calcul. En particulier, les incertitudes systématiques liées au dispositif expérimental sont propagées par des techniques de marginalisation. La marginalisation permet de propager ces incertitudes sur le spectre calculé, en obtenant des incertitudes réalistes sans besoin d'être artificiellement rehaussées comme c'est souvent le cas dans le cadre d'ajustements bayésiens. La propagation de ces incertitudes expérimentales impacte aussi la matrice de corrélation du spectre calculé. On présente les résultats pour la fission induite par neutron thermique de ^{235}U et de ^{239}Pu . Pour le modèle de Madland-Nix avec section inverse constante, l'énergie moyenne des neutrons prompts obtenue est de 1.979 MeV pour ^{235}U , et de 2.087 MeV pour le ^{239}Pu . Le dernier aspect de la thèse est l'étude de l'impact du PFNS et de ses covariances sur le calcul du flux neutronique sur la cuve d'un réacteur. L'enjeu est de taille, car l'estimation de la fluence au niveau de la cuve d'un réacteur détermine l'intégrité de celle-ci, et donc la durée de vie du réacteur. On observe l'importance des termes de corrélations du spectre pour calculer notamment l'incertitude sur le flux intégré au-dessus de 1 MeV, de l'ordre de 6% (incertitude due seulement au spectre).

Abstract The prompt fission neutron spectrum (PFNS) is very important for various nuclear physics applications. Yet, except for the ^{252}Cf spontaneous fission spectrum which is an international standard and is used for metrology purposes, the PFNS is still poorly known for most of the fissioning nuclides. In particular, few measurements exist for the fast fission spectrum (induced by a neutron whose energy exceeds about 100 keV), and the international evaluations show strong discrepancies. There are also very few data about covariances associated to the various PFNS evaluations. In this work we present three aspects of the PFNS evaluation. The first aspect is about the spectrum modeling with the FIFRELIN code, developed at CEA Cadarache, which simulates the fission fragment de-excitation by successive emissions of prompt neutrons and gammas, via the Monte-Carlo method. This code aims at calculating all fission observables in a single consistent calculation, starting from fission fragment distributions (mass, kinetic energy and spin). FIFRELIN is therefore more predictive than the analytical models used to describe the spectrum. A study of model parameters which impact the spectrum, like the fragment level density parameter, is presented in order to better reproduce the spectrum. The second aspect of this work is about the evaluation of the PFNS and its covariance matrix. We present a methodology to produce this evaluation in a rigorous way, with the CONRAD code, developed at CEA Cadarache. This implies modeling the spectrum through simple models, like the Madland-Nix model which is the most commonly used in the evaluations, by adjusting the model parameters to reproduce experimental data. The covariance matrix arises from the rigorous propagation of the sources of uncertainty involved in the calculation. In particular, the systematic uncertainties arising from the experimental set-up are propagated via a marginalization technique. The marginalization allows propagating these uncertainties on the calculated spectrum, and obtaining realistic uncertainties without having to artificially raise them, as it is sometimes necessary in Bayesian adjustments. The experimental uncertainty propagation also impacts the spectrum correlation matrix. We present the result for thermal neutron-induced fission of ^{235}U and ^{239}Pu . For the Madland-Nix model with constant inverse cross-section, the prompt neutron mean energy is 1.979 MeV for ^{235}U and 2.087 MeV for ^{239}Pu . The last aspect of this work is the calculation of the impact of the PFNS and its covariance matrix on a reactor vessel flux. This calculation is of major importance, since the vessel fluence estimation determines the vessel integrity, and therefore determines the reactor lifetime. We observe the importance of the PFNS correlation terms, to compute in particular the vessel flux uncertainty above 1 MeV, which is of the order of 6% (uncertainty only due to PFNS).